

PENGARUH KONSENTRASI NaOH TERHADAP UKURAN KRISTAL ZEOLIT A YANG DISINTESIS DARI LIMBAH *GEOTHERMAL*

Deni Fajar Fitriyana^{1*}, Sulardjaka¹, Norman Iskandar¹ dan M.Dzulfikar²

¹Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro
Jl. Prof. H. Soedarto, Tembalang, Kota Semarang 50275.

²Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Wahid Hasyim
Jl. Menoreh Tengah X/22, Sampangan, Semarang 50236

*Email: deniifa89@gmail.com

Abstrak

Telah dilakukan sintesis zeolite berbahan dasar limbah geothermal dari Pembangkit Listrik Tenaga Panas Bumi (PLTP) Geo Dipa Energi, Dieng, Wonosobo, Jawa Tengah. Penelitian ini bertujuan untuk meneliti pengaruh konsentrasi NaOH terhadap karakteristik zeolit yang disintesis dari limbah geothermal. Sebelum digunakan sebagai bahan dasar sintesis, lumpur geothermal terlebih dahulu dilakukan kalsinasi pada suhu 850°C selama 3 jam. Sintesis menggunakan metode hydrothermal pada suhu 100°C selama 4 jam dengan variasi konsentrasi NaOH 1,67 M, 3M dan 5M. Karakterisasi produk sintesis dilakukan dengan menggunakan spektroskopi serapan atom (AAS), difraktometer sinar-x (XRD) dan scanning electron microscope (SEM). Dari hasil uji AAS kandungan silika pada lumpur geothermal setelah proses kalsinasi meningkat dari 49,1% menjadi 80,0426%. Dari hasil analisis data XRD dan SEM, peningkatan konsentrasi NaOH akan menurunkan crystal sizes dan crystallization time zeolite A.

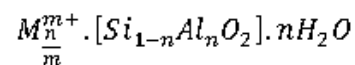
Kata Kunci: sintesis, hidrotermal, zeolit A, sodalit

PENDAHULUAN

Penggunaan energi panas bumi sebagai Pembangkit Listrik Tenaga Panas Bumi (PLTP) memberikan dampak positif pada pembangunan nasional, karena panas bumi merupakan energi terbarukan yang ketersediaannya melimpah. Namun dampak negatif penggunaan panas bumi sebagai sumber energi adalah produksi energi panas bumi menghasilkan limbah. Limbah yang dihasilkan berupa *geothermal brine* dan *sludge*. Limbah padat (*sludge*) berasal dari endapan pada proses pengolahan limbah cair (*geothermal brine*) dan kerak silika dari pipa-pipa instalasi Pusat Listrik Tenaga Panas Bumi (PLTP). Karakterisasi pada *geothermal sludge* menunjukkan kandungan *silica* (SiO₂) sebesar 50,20% (Sulardjaka, 2014). Dalam proses sintesis *zeolite*, masalah terbesar adalah ketersediaan dan mahalnya harga SiO₂ sebagai bahan dasar dalam proses sintesis. Besarnya kandungan SiO₂ pada *geothermal sludge* merupakan solusi bahan baku untuk proses pembuatan *zeolite* sintesis (Deni Fajar Fitriyana, 2012).

Zeolite merupakan kristal alumina-silika yang mempunyai struktur berongga atau berpori dan mempunyai sisi aktif yang bermuatan negatif yang mengikat secara lemah kation penyeimbang muatan. Komposisi *zeolite* dapat

dengan baik dijelaskan dengan tiga komponen sebagai berikut (Payra, 2003):



Dimana :

$M_{\frac{n}{m}}^{m+}$ merupakan *extraframework kation* (unsur logam)

[Si_{1-n}Al_nO₂] merupakan kerangka zeolit
nH₂O merupakan *sorbed phase*

Zeolite terbagi atas dua jenis berdasar asalnya yaitu *zeolite* alam dan *zeolite* sintesis. *Zeolite* sintesis adalah material yang meliki sifat fisik dan kimia yang hampir sama dengan sifat fisik dan kimia dari material *zeolite* alam. *Zeolite* sintesis lebih sering digunakan untuk kepentingan komersial dibandingkan dengan *zeolite* alam, hal ini dikarenakan keseragaman ukuran partikel dan tingkat kemurnian yang tinggi pada zeolit sintesis. Keuntungan lainnya struktur zeolit sintesis adalah dapat dibuat sesuai dengan yang diinginkan (Sri Sugiarti, 2017).

Dalam penelitian ini akan dilakukan sintesis *zeolite* secara *hydrothermal* berbahan dasar lumpur *geothermal* yang didapat dari PLTP Dieng dengan variasi konsentrasi NaOH 1,67 M, 3M, 5M pada suhu 100°C selama 4 jam dengan pH>12. Penelitian ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh konsentrasi NaOH

terhadap struktur, morfologi, kristalisasi dan ukuran kristal *zeolite* yang terbentuk.

METODE PENELITIAN

Preparasi *Geothermal Sludge*

Serbuk *geothermal* dari PLTP diang dijemur dan dikeringkan. Setelah kering, dilakukan proses penganyakan dengan ukuran *mesh* 100. Kemudian dilanjutkan dengan pengujian AAS dan XRD untuk mengetahui komposisi kimia dan fasa kristalin pada serbuk *geothermal*. Tahap selanjutnya adalah menghilangkan senyawa organik didalam serbuk *geothermal* dengan proses kalsinasi menggunakan tungku oven *charbolite* pada suhu 850°C selama 3 jam (Deni Fajar Fitriyana, 2018), Untuk mengetahui perubahan komposisi kimia dan perubahan fasa kristalinnya, dilakukan pengujian AAS dan XRD.

Pembuatan Natrium Aluminat

Pembuatan larutan natrium aluminat dimulai dengan melarutkan 20 gr NaOH kedalam 100 mL aquades. Larutan yang terbentuk dimasukan kedalam gelas kaca, kemudian tempatkan pada *magnetic stirrer*. *Magnetic stirrer* diatur pada suhu 100°C dan dengan kecepatan putaran 300 rpm. 8,5 gr Al (OH)₃ ditambahkan sedikit demi sedikit kedalam larutan NaOH yang sudah dipanaskan. Proses ini dilakukan selama 20 menit sehingga terbentuk larutan natrium aluminat tanpa adanya pengendapan (Deni Fajar Fitriyana, 2013)

Pembuatan Natrium Silikat

30 mL natrium aluminat dari proses sebelumnya dicampur dengan 30 mL larutan NaOH 5M, NaOH 3M dan NaOH 1,67M. Kemudian tambahkan 3 gr serbuk *geothermal* yang telah dikalsinasi. Pencampuran dilakukan menggunakan *magnetic stirrer* yang telah diatur pada suhu 30°C dengan kecepatan putaran 300 rpm. Proses pencampuran tersebut dilakukan selama 2 jam untuk memperoleh larutan natrium silikat yang bersifat homogen [6]. Natrium silikat yang dihasilkan dimasukkan ke dalam tabung teflon kemudian ditempatkan pada alat *hydrothermal*. Proses sintesis dimulai dengan pemanasan sampai suhu air didalam reaktor sebesar 100°C, kemudian dilakukan penahanan (*holding time*) selama 4 jam. Hasil yang terbentuk kemudian disaring dengan kertas saring *whatmann* untuk memisahkan antara padatan dan *filtrate*. Padatan yang

terbentuk dicuci dengan larutan *aquabidest* dan dikeringkan dengan oven pada suhu 70°C selama 3 jam untuk mendapatkan hasil akhir yaitu serbuk *zeolite*.

HASIL DAN PEMBAHASAN

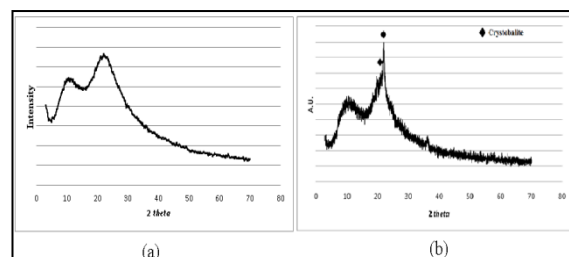
Karakterisasi Serbuk *Geothermal*

Tabel 1 menunjukan komposisi kimia serbuk *geothermal* dari hasil pengujian AAS. Sebelum preparasi, kandungan SiO₂ serbuk *geothermal* sebesar 49,10%. Sedangkan kandungan Al₂O₃ sangat kecil yaitu hanya 0.0559 %. Untuk mendapatkan serbuk *geothermal* dengan kandungan SiO₂ yang lebih tinggi maka harus dilakukan kalsinasi pada suhu 850°C selama 3 jam. Proses kalsinasi ini bertujuan untuk menghilangkan komponen organik yang dapat menguap pada temperatur yang cukup tinggi. Setelah preparasi, kandungan SiO₂ serbuk *geothermal* sebesar 80,0426 % dan kandungan Al₂O₃ sebesar 0.142067%.

Tabel 1 Hasil pengujian AAS sebelum dikalsinasi

NO	Parameter	Sebelum Preparasi(%)	Setelah Preparasi (%)
1	Al ₂ O ₃	0.0559	0.142067
2	Fe ₂ O ₃	0.1919	0.4506
3	Na ₂ O ₃	0.6088	0.7601
4	SiO ₂	49.1	80.0426

Gambar 1 menunjukan difraktogram serbuk *geothermal* sebelum kalsinasi (a) dan setelah kalsinasi (b). Gambar 1 (a) menunjukan serbuk *geothermal* hanya mengandung silika non kristal atau berbentuk amorf. Sedangkan Gambar 1(b) ditemukan peak pada 2θ 21.91 dan 20.88 yang memiliki intensitas relatif sebesar 100 dan 40. Berdasarkan data pada software JCPDS, peak tersebut menunjukan terbentuknya silika mikrokristal yaitu *cristobalite* (JCPDS nomer 03-0267) (Deni Fajar Fitriyana, 2013).



Gambar 1 Difraktogram serbuk *geothermal* sebelum kalsinasi (a) dan setelah kalsinasi(b)

Karakterisasi Padatan Hasil Sintesis

Tabel 2 menunjukkan hasil uji AAS pada produk hasil sintesis. Berdasarkan hasil AAS, rasio Si/Al dalam zeolit sintesis dengan metode *hydrothermal* sebesar 1,788. Hal ini sesuai dengan literatur bahwa zeolit A memiliki perbandingan rasio Si/Al 1-3,5 (Byrappa, 2001).

Tabel 2 Hasil analisis rasio Si/Al dengan AAS

No	Parameter	Komposisi (%)
1	Al	5.865333
2	Si	10.48667

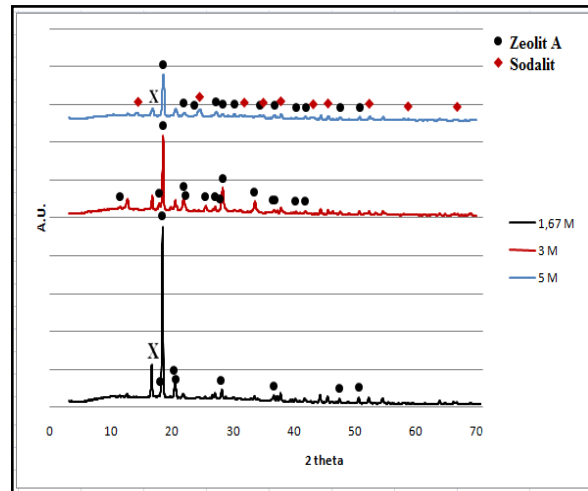
Gambar 2 menunjukkan hasil uji XRD pada *zeolite* setelah proses sintesis dengan variasi konsentrasi NaOH 1,67M, 3M dan 5M dengan suhu *hydrothermal* 100°C 4 jam. Berdasarkan hasil XRD menunjukkan adanya kesesuaian *peak* dari difraktogram *zeolite* hasil sintesis terhadap data JCPDS nomor 11-0401 (Sodalite) dan nomor 31-1269 (Zeolit A) [6]. Sehingga dapat disimpulkan pada ketiga variasi konsentrasi NaOH terbentuk zeolit A dan sodalit. Untuk menentukan ukuran butir suatu kristal *zeolite* sintesis menggunakan persamaan *scherrer* (Hamdan, 1992).

$$L = \frac{57,3 \times k \times \lambda}{FWHM \times \cos \theta}$$

Keterangan:

- L = Ukuran bulir Kristal (nm)
- k = Suatu konstanta oksida (0,94)
- λ = Panjang gelombang sinar X saat pengujian (1,5406 Å)
- FWHM = *Full width half maximum* (lihat data pengujian)
- θ = Sudut posisi puncak difraksi Kristal
- 57,3 = Faktor koreksi dari derajat ke radian

Dengan nilai FWHM dan θ terdapat pada Tabel 3.

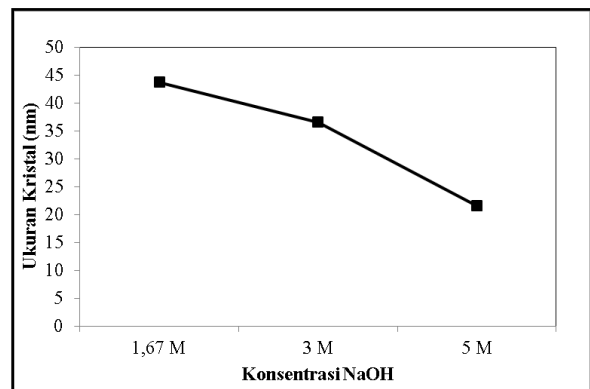


Gambar 2 Difraktogram tiga variasi zeolit hasil sintesis

Tabel 3 Nilai 2 theta dan FWHM pada peak tertinggi pada Gambar 2

Konsentrasi NaOH	2 theta	FWHM
1,67 M	18,4005	0,19230
3 M	18,4882	0,23020
5 M	18,5325	0,3890

Dari hasil perhitungan didapatkan ukuran kristal *zeolite* A menggunakan persamaan *scherrer* pada variasi konsentrasi NaOH 1,67M, 3M, 5M dengan waktu pemanasan 4 jam masing – masing sebesar 43,67 nm ; 36,52 nm; dan 21,56 nm. Untuk mengetahui pengaruh konsentrasi NaOH terhadap ukuran kristal zeolit yang dihasilkan, disajikan Gambar 3.



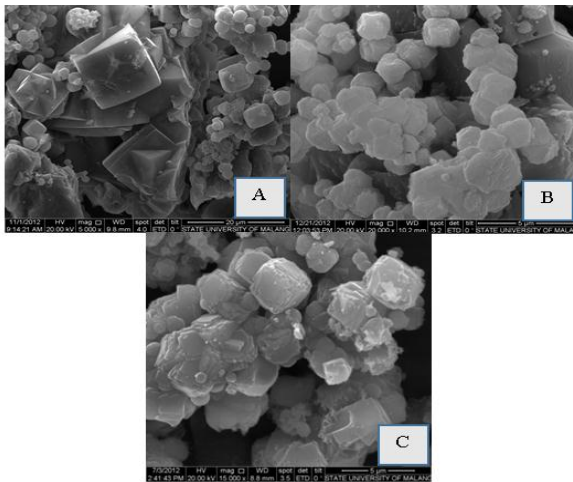
Gambar 3 Pengaruh konsentrasi NaOH terhadap ukuran kristal zeolit A pada waktu pemanasan 4 jam

Gambar 3 merupakan grafik pengaruh peningkatan konsentrasi NaOH terhadap penurunan ukuran kristal zeolit A yang dihasilkan pada waktu pemanasan 4 jam. Fenomena ini terjadi karena setiap peningkatan konsentrasi NaOH akan berakibat pada kristalisasi yang terjadi menjadi lebih cepat.

Karena kristalisasi yang lebih cepat, maka ukuran kristal zeolit A yang dihasilkan akan semakin kecil (Lobo, 2003). Dengan kata lain ukuran kristal dari zeolit A selama sintesis dengan metode *hydrothermal* menurun dengan peningkatan konsentrasi NaOH (Wang, 2008).

Hasil SEM pada zeolite sintesis dengan variasi konsentrasi NaOH ditunjukkan pada Gambar 4. Kristal zeolit A mempunyai bentuk kubus karena disusun oleh polyhedra yang dihasilkan dari 4 cincin tetrahedra yang saling berikatan ganda (D4R) (Wajima, 2005). Hasil pengujian SEM pada Gambar 4 (A), (B) dan (C) ditemukan adanya partikel berbentuk kubus yang menunjukkan struktur zeolite A.

Selain itu terdapat partikel yang berbentuk *spherical* diantara struktur zeolit A yang berbentuk kubus. Adanya partikel berbentuk *spherical* mengindikasikan adanya konversi dari fasa metastabil menjadi kristal zeolit yang lebih stabil dengan menggunakan metode *hydrothermal* (Ojha, 2004).



Gambar 4 Hasil pengujian SEM terhadap zeolit sintesis dengan variasi konsentrasi NaOH 1,67 M (A), 3 M (B) dan 5 M (C).

KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, maka dapat di ambil kesimpulan:

1. Serbuk geothermal memiliki kandungan silika sebesar 80,0426 % sehingga dapat digunakan sebagai sumber silika dalam sintesis zeolit.
2. Zeolit yang disintesis dari serbuk *geothermal* menghasilkan zeolit jenis zeolit A dan Sodalit. Peningkatan konsentrasi NaOH akan mempercepat kecepatan kristalisasi zeolit A sehingga akan

menurunkan ukuran kristal zeolit sintesis dengan bahan dasar serbuk *geothermal*.

DAFTAR PUSTAKA

- Byrappa, K., Yoshimura, Masahiro (editor), (2001), *Hydrothermal Synthesis and Growth of Zeolites in Handbook Of Hydrothermal Technology*, University of Mysore Manasagangotri Mysore, India & Tokyo Institute of Technology Yokohama, Japan.
- Deni Fajar Fitriyana, (2013), *Pengaruh Konsentrasi NaOH Dan Waktu Pemanasan Hydrothermal Terhadap Kristalisasi Zeolit A Yang Disintesis Dari Limbah Geothermal*, Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro.
- Deni Fajar Fitriyana, Sulardjaka, (2012), *Sintesis Zeolit A Berbahan Dasar Limbah Geothermal Dengan Metode Hidrotermal*, Simposium Nasional Rapi XI FT UMS : 42-47.
- Deni Fajar Fitriyana, Sulardjaka, Norman Iskandar, M. Dzulfikar, (2018), *Pengaruh Suhu Hydrothermal Terhadap Karakteristik Zeolit Yang Disintesis Dari Limbah Geothermal*, Jurnal Ilmiah MOMENTUM volume 14 : 46-50.
- Hamdan, H. (1992). *Introduction to Zeolites Synthesis, Characterization and Modifications*. University Technology Malaya. Malaysia.
- Lobo, Raul F., (2003), *Introduction to the Structural Chemistry of Zeolites*, University of Delaware, U.S.A.
- Ojha, K., Pradhan, N., dan Samanta, A., (2004), *Zeolite from fly ash: synthesis and characterization*. Bull. Mater. Sci.(27) : 555–564.
- Payra, Pramatha and Dutta, Prabir K., (2003), *Handbook Of Zeolite Science And Technology*, The Ohio State University Columbus Ohio, U.S.A.
- Sri Sugiarti, Charlena, Nurul Afiati Aflakhah, (2017), *Zeolit Sintesis Terfungsionalisasi 3- Trimetoksisilil)-1-Propantiol sebagai Adsorben Kation Cu(II) dan Biru Metilena*, Jurnal Kimia VALENSI: Jurnal Penelitian dan Pengembangan Ilmu Kimia : 11-19.
- Sulardjaka, D.F. Fitriyana, and A.P. Adi, (2014), *Synthesis of Zeolite from Geothermal Waste*, Applied Mechanics and Materials Vol. 660 : 157-161.

- Wajima, T. H., Mioko, K., Keiko, I., Hiroji, T., Osamu, I., Kazuhiko, N. T., Downs, Robert T., Rakovan, John F. (2005). *Zeolite synthesis from paper sludge ash at low temperature (90°C) with addition of diatomite*. Journal of Hazardous Materials B (132) : 244–252.
- Wang, C. F., Sheng Li, J., Jun Wang, L., Sun, X. Y., (2008), *Influence of NaOH concentrations on synthesis of pure-form zeolite A from fly ash using two-stage method*, Journal of Hazardous Materials 155 : 58–64.