



Pengaruh Pemeraman dan Suhu Pada Sintesis Zeolit Y dari Lumpur

Susi N Khalifah*, Udi Tyas T.H.T.A.R, Saidun Fiddaroini, Suci Amalia

Program Studi Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim, Malang, Indonesia, 65144

INFO ARTIKEL**Riwayat Artikel**

Diterima : 02 Januari 2022

Direvisi : 16 Januari 2022

Diterima : 20 Maret 2022

Tersedia online : 27 Mei 2022

* Penulis korespondensi:

susikhalifah@kim.uin-malang.ac.id

ABSTRAK

Aging time can increase the nucleation rate and reduce the induction period and crystallization time of zeolite. Thus, curing has an important role in the synthesis process of zeolite Y. Synthesis of zeolite Y can be carried out from silica extracted from Lapindo mud. Synthesis was carried out with and without curing with various crystallization temperatures of 60, 80 and 100 °C. The results showed that the synthesis of zeolite Y without curing time resulted in an amorphous phase structure with crystallization temperature not affecting the reaction product. Meanwhile, giving curing time at room temperature for 24 hours before crystallization can increase the crystallinity of zeolite Y. Crystallization temperature also affects the formation of zeolite Y, where crystallization at 100 °C produces more zeolite Y products than crystallization temperatures of 80 and 60 °C.

Keywords: *Aging time, Lapindo mud, Zeolite Y*

Pemeraman dapat meningkatkan laju nukleasi serta mengurangi periode induksi dan waktu kristalisasi zeolite. Sehingga, pemeraman memiliki peran penting pada proses sintesis zeolite Y. Sintesis zeolite Y dapat dilakukan dari bahan silika yang diekstrak dari lumpur Lapindo. Sintesis dilakukan dengan dan tanpa pemeraman dengan variasi suhu kristalisasi 60, 80 dan 100 °C. Hasil menunjukkan sintesis zeolite Y tanpa waktu pemeraman menghasilkan struktur berfasa amorf dengan suhu kristalisasi tidak mempengaruhi produk hasil reaksi. Sedangkan pemberian waktu pemeraman pada suhu ruang selama 24 jam sebelum kristalisasi dapat meningkatkan kristalinitas dari zeolit Y. Suhu kristalisasi juga mempengaruhi pembentukan zeolit Y, dimana kristalisasi pada suhu 100 °C menghasilkan lebih banyak produk zeolit Y daripada suhu kristalisasi 80 dan 60 °C.

Keywords: *Pemeraman, Lumpur Lapindo, Zeolit Y*

1. Pendahuluan

Lumpur adalah campuran air dan beberapa kombinasi tanah, lempung serta zat biologis yang membentuk sedimen [1]. Salah satu sumber lumpur terbesar di Indonesia berasal dari bencana nasional semburan lumpur akibat pengeboran PT. Lapindo Brantas Inc. Lumpur Lapindo memiliki banyak mineral alam yang berpotensi untuk dieksplorasi. Kandungan terbesar lumpur lapindo adalah silika dan alumina [2]. Kandungan silika dan alumina yang tinggi, dapat digunakan sebagai bahan dasar sintesis zeolit.

Zeolit Y dan zeolit X sama-sama memiliki tipe struktur faujasit (FAU). Zeolit Y memiliki rasio atomik Si/Al yang lebih tinggi daripada zeolit X. Kandungan silika yang lebih tinggi pada zeolit Y, menjadikan zeolit Y memiliki stabilitas termal yang lebih tinggi dari pada zeolit X. Sehingga, zeolit Y banyak digunakan secara luas sebagai katalis, pertukaran ion dan adsorben. Zeolit Y juga digunakan sebagai *Fluid Cracking Catalyst* (FCC) destilasi minyak bumi untuk meningkatkan produksi bensin dan solar [3]. Berbagai macam aplikasi lain telah dilaporkan untuk zeolit Y termasuk alkoholisasi, penghilangan pengawet yang beracun pada bidang farmasi dan sebagai *drug delivery system* [4].

Pada proses sintesis zeolit, perlu dilakukan metode pemeraman sebelum proses kristalisasi. Pemeraman dilakukan dengan mengaduk campuran reaksi dengan waktu tertentu pada suhu yang mendekati suhu kamar [5], pada suhu yang lebih rendah, seperti 4°C [6], atau bahkan pada suhu yang lebih tinggi, seperti 50 dan 70°C [7].

Pemeraman memiliki peran penting dalam sintesis zeolit Y untuk menekan fase lain terbentuk selain faujasit dan dapat mengontrol ukuran kristal. Kristal yang terbentuk melalui pemeraman lebih kecil daripada yang terbentuk tanpa pemeraman dan semakin lama proses pemeraman, maka semakin kecil ukuran kristal zeolit yang terbentuk. Hal ini disebabkan struktural nukleasi sudah terbentuk selama proses pemeraman [8]. Jadi pemeraman dapat meningkatkan laju nukleasi dan mengurangi periode induksi dan waktu kristalisasi zeolit [9, 10].

Zeolit Y pada umumnya disintesis dengan kristalisasi hidrotermal aluminosilikat pada suhu rendah (70–300 °C, biasanya 100 °C) dan tekanan dalam kondisi basa. Temperatur kristalisasi juga mempengaruhi pertumbuhan kristal dan reaksi antarmuka partikel kristal aktif. Hal ini dikarenakan zeolit NaY terbentuk pada temperatur kristalisasi tertentu. Jika pemanasan melebihi suhu kristalisasi NaY maka zeolit P akan terbentuk sebagai pengotor [11].

2. Bahan dan Metode

2.1. Bahan

Lumpur lapindo, aquades, Natrium hidroksida (NaOH) (p.a, Merck), Alumina (Al₂O₃), HCl 6M

2.2. Metode

2.2.1 Preparasi Lumpur Lapindo

Pengambilan lumpur Lapindo didapat dari lumpur yang berjarak sekitar 2km dari pusat semburan. Perendaman lumpur Lapindo dilakukan dengan aquades selama satu jam dengan perbandingan 1:2 (*b/v*). Ekstrak lumpur Lapindo disaring untuk mendapatkan endapan lumpur. Lumpur yang didapat kemudian dikeringkan selama tujuh hari pada suhu ruang untuk menghilangkan kadar airnya. Lumpur kering kemudian dihaluskan menggunakan mortar.

2.2.2 Ekstraksi SiO₂ dari Lumpur Lapindo

500 gram lumpur dicuci menggunakan HCl 2 M selama 1 jam dengan perbandingan 1:2 (*b/v*). Ekstrak disaring dan endapan dicuci dengan aquades hingga pH netral. Endapan ditambahkan dengan NaOH 7 M dengan perbandingan 1:2 (*b/v*) dan distirer selama 4 jam pada suhu 80 °C. Endapan dipisahkan melalui penyaringan. Filtrat dipanaskan selama 10 pada suhu 40 °C menit kemudian dititrasi dengan HCl 3 M sambil distirrer pada suhu 40 °C hingga pH mendekati 7 dan terbentuk endapan putih silika. Endapan putih silika yang

dihasilkan kemudian disaring dan dicuci menggunakan aquades untuk menghilangkan pengotor yang berupa garam NaCl dari endapan SiO₂. Endapan lalu dikeringkan selama 1 jam pada suhu 100 °C.

2.2.3 Sintesis Zeolit Y

Sintesis zeolit Y dilakukan dengan komposisi 10 Na₂O: 1 Al₂O₃: 15 SiO₂: 300 H₂O. Campuran diaduk selama 30 menit dan dieramkan selama 24 jam pada suhu ruang. Campuran kemudian dikristalisasi dengan hidrotermal pada variasi suhu 60, 80, dan 100 °C selama 48 jam. Kristal yang terbentuk dicuci dengan aquades hingga pH netral. Produk akhir dikeringkan pada suhu 100 °C selama 12 jam.

2.3 Karakterisasi

Karakterisasi menggunakan XRF dan XRD dilakukan pada sampel lumpur Lapindo dan SiO₂ hasil ekstraksi. Karakterisasi dengan XRD dilakukan dengan penyinaran dengan sinar-X dengan radiasi Cu K α pada λ sebesar 1,541 Å, voltase 40 kV, arus 30 mA, sudut 2 θ sebesar 5 – 50° dan kecepatan scan 0,02 %/detik. Karakterisasi dengan FTIR hanya dilakukan terhadap zeolit Y hasil sintesis variasi suhu hidrotermal 60, 80, dan 100 °C. Sampel digerus dengan mortal agate hingga halus dan dicampurkan padatan KBr dengan prosentase KBr adalah 98%, kemudian dipress untuk membentuk pellet. Selanjutnya ditempatkan pada *sampel holder* dan dianalisa menggunakan FTIR.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 Karakter SiO₂ Hasil ekstraksi dari Lumpur Lapindo

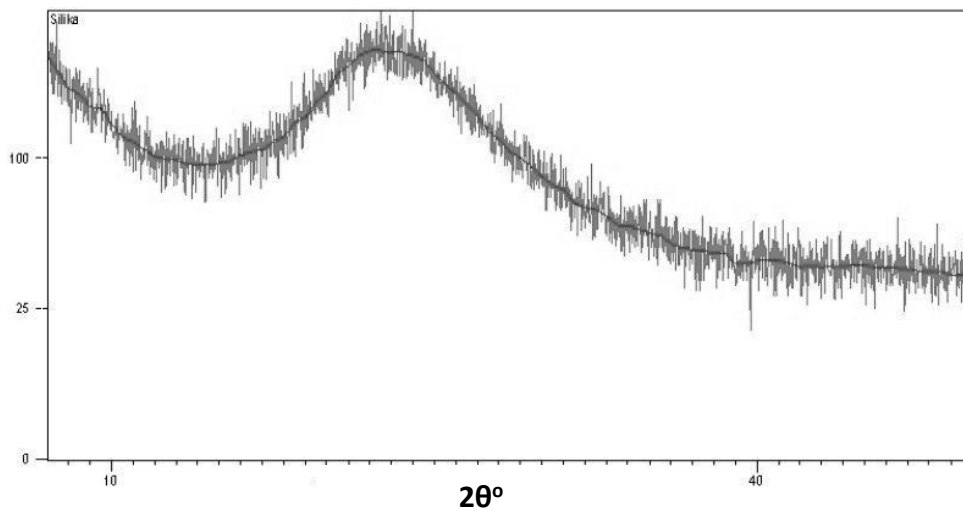
Ekstraksi SiO₂ dari lumpur dilakukan untuk mengurangi pengotor dan meningkatkan prosentase kandungan silika. Metode ekstraksi silika dilakukan dengan menggunakan asam (HCl) untuk melarutkan pengotor/ logam-logam lain yang terkandung dalam lumpur. Penggunaan basa (NaOH) juga dilakukan pada ekstraksi SiO₂ untuk melarutkan SiO₂, sedangkan pengotor/logam-logam lainnya sedikit larut dalam basa.

Tabel 1. Hasil ekstraksi SiO₂ dari lumpur Lapindo

Unsur	Prosentase	
	* Sebelum Ekstraksi	Setelah Ekstraksi
Al	5,60 %	-
Si	19,70 %	96,8 %
S	1,05 %	-
K	3,43 %	-
Ca	8,84 %	1,03 %
Ti	2,43 %	0,10 %
Cr	0,13 %	-
Fe	54,65 %	0,073 %
Ni	0,18 %	0,2 %
Cu	0,26 %	0,12 %
Zn	0,10 %	0,072 %
Re	1,60 %	0,28 %
V	0,13 %	0,13 %
Eu	0,40 %	-

Tabel 1 menunjukkan keberhasilan ekstraksi SiO₂ dari lumpur dengan pengurangan logam-logam secara signifikan. Prosentase kandungan Fe yang sangat besar pada lumpur dapat dikurangi menjadi kecil sekali prosentasenya setelah proses ekstraksi SiO₂.

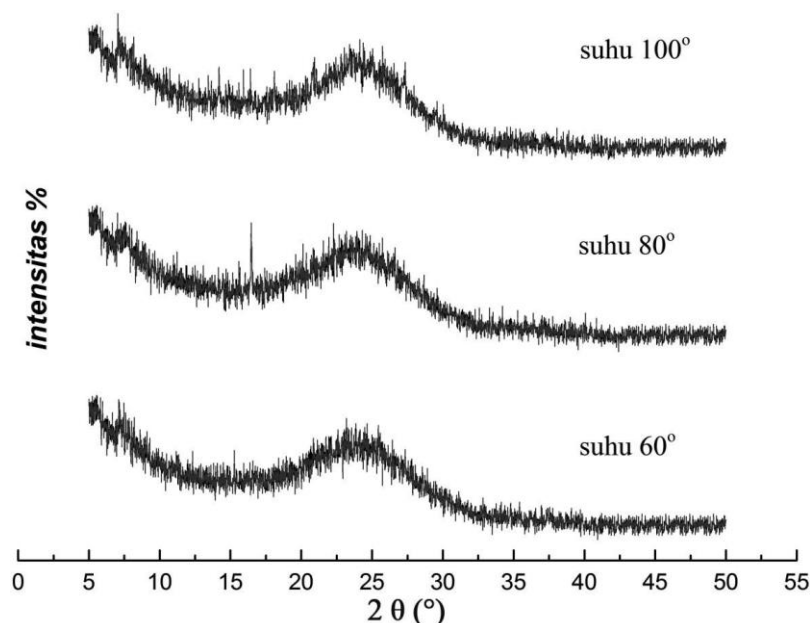
Silika hasil ekstraksi lumpur juga dianalisis strukturnya menggunakan XRD. **Gambar 1** menunjukkan silika memiliki struktur amorf yang lebih reaktif dari pada struktur kristalin. Struktur amorf dan kandungan pengotor yang sangat kecil sekali menjadikan silika hasil ekstraksi lumpur Lapindo ini sangat baik untuk dijadikan bahan dasar untuk sintesis zeolit.



Gambar 1. Difraktogram SiO₂ dari lumpur Lapindo

3.2 Karakter Zeolit Y hasil Sintesis

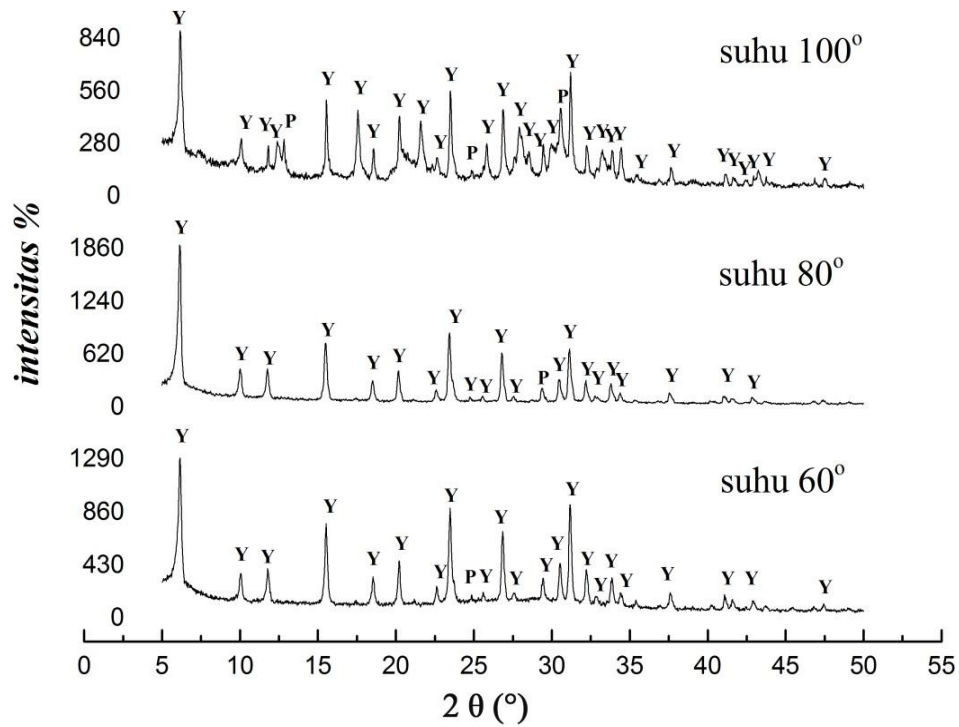
Sintesis zeolit Y dilakukan dengan dan tanpa pemeraman. **Gambar 2** menunjukkan hasil XRD sintesis zeolit Y tanpa proses pemeraman. Struktur hasil sintesis masih berupa amorf sama dengan struktur silika, hal ini menunjukkan bahwa pemeraman adalah proses yang harus dilakukan pada sintesis zeolit. Kenaikan suhu kristalisasi dari 60°C sampai dengan 100°C tidak dapat merubah struktur amorf menjadi kristalin tanpa adanya proses pemeraman. Pemeraman merupakan proses terbentuknya inti kristal, sehingga pemeraman adalah salah satu indikator keberhasilan sintesis zeolit.



Gambar 2. Hasil analisis kualitatif sintesis zeolit Y tanpa pemeraman pada suhu 60, suhu 80 dan suhu 100°C

Sintesis zeolit Y dari sumber silika hasil ekstraksi lumpur juga dilakukan dengan proses pemeraman selama 24 jam (**Gambar 3**). Proses pemeraman dapat meningkatkan kristalinitas dan struktur zeolit Y dapat terbentuk. Pada suhu rendah 60 dan 80°C zeolit Y terbentuk dengan sedikit pengotor zeolit P. Sedangkan suhu semakin tinggi 100°C zeolit P semakin banyak terbentuk. Hal ini dimungkinkan adanya beberapa kesamaan

Secondary Building Unit (SBU) dari zeolit Y dan zeolit P. Zeolit Y dapat dibentuk dari beberapa kemungkinan SBU yaitu 6-6 atau 6-2 atau 6 atau 4-2 atau 1-4-1 atau 4 dan zeolit P dapat dibentuk dari 2 kemungkinan bentuk SBU yaitu 8 atau 4. Kemungkinan SBU 4 yang dibentuk sebelum pembentukan *Composite Building Unit* dan akhirnya terbentuk struktur zeolit Y dengan sedikit pengotor zeolit P.



Gambar 3. Hasil analisis kualitatif zeolit Y dengan standar *Collection of Simulated XRD Powder Patterns for Zeolites* pada suhu 60, 80, dan 100 °C



d6r (t-hpr)



sod (t-toc)

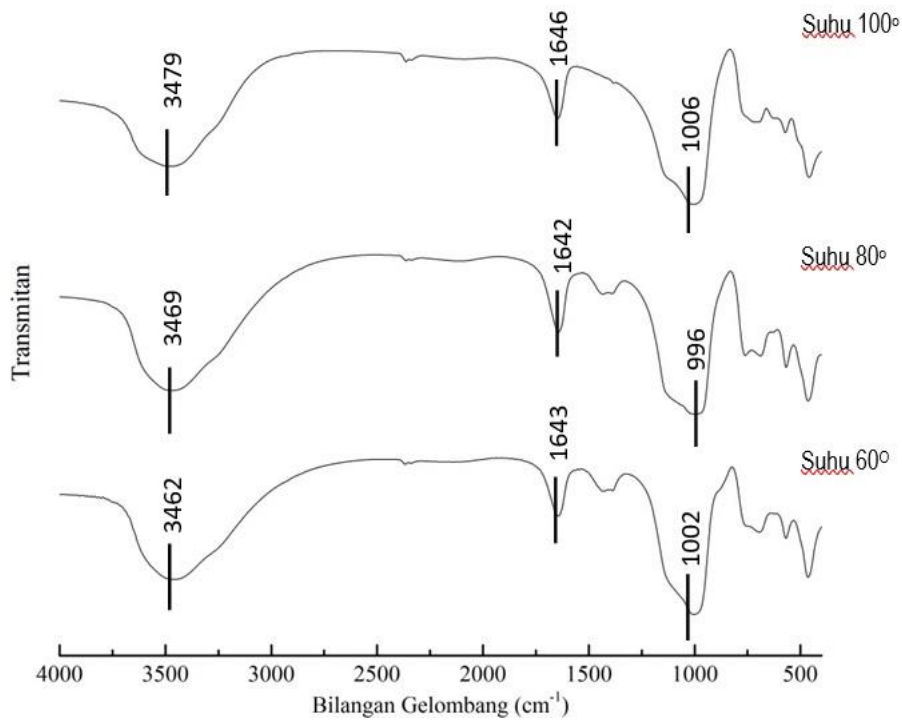


gis (t-gsm)

Gambar 4. *Composite Building Units* Zeolit Y

Gambar 5. *Composite Building Unit* Zeolit P

Gambar 4 dan 5 merupakan *Composite Building Unit* (CBU) zeolit Y dan P. Dilihat dari struktur CBU, zeolit Y lebih mudah terbentuk dari pada zeolit P. Hasil XRD juga dapat dilihat bahwa zeolit P akan terbentuk lebih banyak dengan suhu yang lebih tinggi.



Gambar 6. Spektra IR zeolit Y hasil sintesis suhu 60, 80 dan 100 °C

Tabel 2. Interpretasi spektra IR zeolit Y hasil sintesis suhu 60, 80 dan 100 °C

No	Bilangan Gelombang Standar (cm ⁻¹)*	Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)			Interpretasi
		Zeolit Y suhu 60 °C	Zeolit Y suhu 80 °C	Zeolit Y suhu 100 °C	
1	500-420	464	463	458	Vibrasi tekuk O-T-O
2	650-500	569	567	571	Cincin ganda
3	720-650	692	688	717	Vibrasi ulur simetri O-T-O
4	1250-950	1002	996	1006	Vibrasi ulur asimetri O-T-O
5	1650-1600**	1643	1642	1646	Vibrasi tekuk H-O-H
6	3700-3000**	3462	3469	3479	Vibrasi O-H

Karakterisasi menggunakan FTIR menunjukkan hasil yang hamper sama, hal ini dikarenakan bahan dan perlakuan yang sama. Secara umum, ketiga hasil IR menunjukkan adanya serapan pada bilangan gelombang 820-650 yang mewakili vibrasi ulur simetri O-Si-O maupun O-Al-O dan pada bilangan gelombang 1250-950 yang mewakili vibrasi ulur asimetri O-Si-O maupun O-Al-O. Daerah *fingerprnt* pada zeolite Y muncul pada bilangan gelombang berturut-turut untuk suhu kristalisasi 60,80 dan 100 °C adalah 569, 567 dan 571 cm⁻¹ yang merupakan cincin ganda 6 dari struktur faujasit.

4. Kesimpulan

Berdasarkan uraian tersebut, dapat disimpulkan bahwa silika hasil ekstraksi dapat digunakan sebagai sumber silika pada proses sintesis zeolit Y. sintesis zeolite Y tanpa waktu pemeraman menghasilkan struktur berfasa amorf dengan suhu kristalisasi tidak mempengaruhi produk hasil reaksi. Sedangkan pemberian waktu pemeraman pada suhu ruang selama 24 jam sebelum kristalisasi dapat meningkatkan kristalinitas dari zeolit Y. Suhu kristalisasi juga mempengaruhi pembentukan zeolit Y, dimana kristalisasi pada suhu 100 °C menghasilkan lebih banyak produk zeolit Y daripada suhu kristalisasi 80 dan 60 °C.

Daftar Pustaka

- [1] Manning, A. J., Baugh, J. V., Spearman, J. R., & Whitehouse, R. J. S. Flocculation settling characteristics of mud: sand mixtures. *Ocean Dynamics*, 2010, 60(2), 237–253.
- [2] Jalil, A.A., Triwahyono S., Adam, S.H., Rahim, N.D., Aziz, M.A.A., Hairom, N.H.H., Razali, N.A.M., Abidin, M.A.Z., Mohamadiah, M.K.A. Adsorption of Methyl Orange from Aqueous Solution onto Calcined Lapindo Volcanic Mud. *Journal Article*, 2010, Vol. 181, h. 755-762. Science Direct.
- [3] Drioli, E., & Giorno, L. (Eds.). 2016, *Encyclopedia of Membranes*.
- [4] Kung HH, Williams BA, Babitz SM, Miller JT, Haag WO, Snurr RQ. Enhanced hydrocarbon cracking activity of Y zeolites. *Top Catal*, 2000, 1–2:59–64
- [5] Pavelic K, Hadzija M Medical applications of zeolites. In: Auerbach SM, Carrado KA, Dutta PK (eds) *Handbook of zeolite science and technology* (chap. 24). Marcel Dekker, 2003, New York
- [6] H. van Bekkum, E.M. Flanigen and J.C. Jansen. Elsevier Science Publishers, Amsterdam and New York 1991
- [7] Jülide Köroğlu, H., Sarioğlu, A., Tatlıer, M., Erdem-Şenatalar, A., & Tunç Savaşçı, Ö. *Effects of low-temperature gel aging on the synthesis of zeolite Y at different alkalinities. Journal of Crystal Growth*, 2002, 241(4), 481–488.
- [8] Cundy, C. S., & Cox, P. A. The hydrothermal synthesis of zeolites: Precursors, intermediates and reaction mechanism. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2005, 82(1-2), 1-78
- [9] Jihong, Y., Chapter 3 Synthesis of zeolites. In: Čejka, Jiří, v. B., H., C., A., Ferdi, S. (Eds.), *Studies in Surface Science and Catalysis*. vol. 168. Elsevier, Amsterdam, 2007, pp. 39–103
- [10] Maia, A. Á. B., Dias, R. N., Angélica, R. S., & Neves, R. F. Influence of an aging step on the synthesis of zeolite NaA from Brazilian Amazon kaolin waste. *Journal of Materials Research and Technology*. 2019.
- [11] Sumari, S., Fajaroh, F., Yahmin, Sholihah, N., Santoso, A., & Budianto, A. *Effect of Temperature Synthesis on Structural Behaviours of NaY Zeolite Using Local Sand as A Silica Source. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 2019, 515, 012036.