Pengaruh Waktu *Aging* pada Sintesis Zeolit *Linde Type*-A (LTA) dari Zeolit Alam Lampung (ZAL) dengan Metode *Step Change Temperature of Hydrothermal*

Effect of Aging Time in Synthesis of Zeolite Linde Type-A (LTA) from Lampung Natural Zeolite (ZAL) with Step Change Temperature of Hydrothermal Method

Simparmin Br. Ginting[1*], Guntur Arya Perdana[1], Darmansyah[1], Dewi Agustina Iryani[1], Herry Wardono[2]
[1]Jurusan Teknik Kimia, [2]Jurusan Teknik Mesin
[1,2]Fakultas Teknik, Universitas Lampung, Bandar Lampung, Indonesia
*E-mail: simparmin@gmail.com

Abstrak

Zeolit Lynde Type-A (LTA) merupakan zeolit yang tergolong dalam kadar Si/Al rendah. Zeolit LTA memiliki berbagai kegunaan, antara lain sebagai adsorben, katalis, membran, penukar ion, maupun *molecular sieve*. Zeolit LTA sebagai *molecular sieve* memiliki kemampuan dehidrasi yang tinggi sehingga dapat digunakan untuk dehidrasi air pada campuran bioetanol-air agar diperoleh bioetanol yang sesuai dengan FGE (*Fuel Grade Ethanol*), yaitu kemurnian mencapai >99%. Zeolit LTA dapat menyerap air di dalam bioetanol dikarenakan sifat Zeolit LTA yang hidrofilik. Sifat hidrofilik ini didapatkan karena Zeolit LTA memiliki kadar Si yang rendah sehingga Zeolit LTA memiliki afinitas tinggi terhadap molekul air. Sumber Silika dan Alumina yang digunakan berasal dari Zeolit Alam Lampung (ZAL) yang berasal dari Lampung Selatan. Penelitian ini mengkaji pengaruh waktu *aging* agar diperoleh persen kristalinitas relative zeolit LTA yang tinggi. Variasi waktu *aging* pada penelitian ini adalah 0 jam, 15 jam, 30 jam, dan 45 jam. Tahapan sintesis zeolit dilakukan pada sebuah *water bath* secara hidrotermal dengan metode *step change temperature*, yaitu pada suhu 90ºC selama 1,5 jam dan 95ºC selama 2,5 jam. Hasil sintesis dianalisis menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscopy*), FTIR (*Fourier Transmission Infra Red*), BET (*Brunaur, Emmet And Teller*), dan XRD (*X-Ray Diffracton*). Berdasarkan analisis FTIR, hasil sintesis mempunyai ciri khas Zeolit LTA yaitu *double rings* pada bilangan gelombang 550-600 cm^{-1}, persen kristalinitas relatif tertinggi yang didapatkan dari hasil analisis XRD adalah sebesar 66,15%, hasil analisis SEM menunjukkan morfologi Zeolit LTA berbentuk kubus, dan berdasarkan analisis BET didapatkan isotherm adsorpsi tipe ketiga.

Kata kunci : Bioetanol, *Fuel Grade Ethanol*, Metode *Step Change Temperature*, *molecular sieve*, waktu *aging*, Zeolit Lynde Type-A (LTA), Zeolit Alam Lampung

Abstract

Lynde Type-A Zeolite (LTA) is a zeolite classified as low Si / Al ratio. LTA Zeolite has various uses, including adsorbents, catalysts, membranes, ion exchangers, and molecular sieves. LTA zeolite as molecular sieve has a high dehydration ability so it can be used to dehydrate water in a bioethanol-water mixture to obtain bioethanol which is in accordance with FGE (Fuel Grade Ethanol), which is > 99% purity. LTA Zeolite can adsorb water in bioethanol due to the hydrophilic nature of LTA Zeolite . This hydrophilic property is obtained because LTA Zeolite has a low Si content so that the LTA Zeolite has high affinity for water molecules. The sources of Silica and Alumina used are from Natural Lampung Zeolite (ZAL) from South Lampung. This research examines the effect of aging time in order to obtain a high relative percentage of crystallinity of LTA zeolites. The variation of aging time in this study was 0 hours, 15 hours, 30 hours, and 45 hours. The zeolite synthesis stage was carried out in a water bath using the hydrothermal step change temperature method, which was at 90ºC for 1.5 hours and 95ºC for 2.5 hours. Synthesis results were analyzed using SEM (Scanning Electron Microscopy), FTIR (Fourier Transmission Infra Red), BET (Brunaur, Emmet And Teller), and XRD (X-Ray Diffracton). Based on FTIR analysis, the synthesis has the characteristic of LTA Zeolite , that is double rings at wave number 550-600 cm^{-1}, the highest relative percentage of crystallinity obtained from XRD analysis results is 66.15%, the results of SEM analysis show the morphology of LTA Zeolite in cubic form and based on BET analysis, the third form of adsorption isotherm is obtained.

Keywords : Bioethanol, Fuel Grade Ethanol, Step Change Temperature Method, molecular sieve, aging time, Zeolit Lynde Type A (LTA), Natural Lampung Zeolite

1. Pendahuluan

Krisis bahan bakar di dunia semakin lama menjadi salah satu aspek yang perlu mendapatkan perhatian khusus, dikarenakan bahan bakar yang bersumber dari fosil semakin lama semakin berkurang kapasitasnya, jadi diperlukan subtitusi dari bahan bakar fosil menjadi bahan bakar terbarukan. Salah satu jenis bahan bakar terbarukan adalah bioetanol. Bioetanol merupakan salah satu bentuk energi alternatif yang perlu terus dikaji, baik dari segi sumber bahan baku, proses fermentasi dari singkong, serta proses pemurniannya. Bioetanol murni yang memiliki kadar diatas 95%, tidak bisa dihasilkan dengan proses pemurnian biasa, bioetanol *Fuel Grade* (kemurnian >95%). Titik azeotrop dari campuran etanol-air umumnya berada pada 95%, hal inilah mengakibatkan pemisahannya tidak dapat dilakukan dengan distilasi sederhana (Taufanny dkk., 2015).

Bioetanol murni didapatkan melalui proses pemisahan khusus, salah satu teknik pemisahan yang dapat dilakuakan adalah dengan proses dehidrasi-adsorptif dengan bertumpu pada prinsip *molecular sieve* (penyaringan molekul). Pemurnian dengan menggunakan *molecular sieve* relatif murah dan sederhana. Selain itu, *molecular sieve* dapat digunakan berulang kali dan memiliki keuntungan, antara lain penggunaan energi yang rendah, kemampuan dehidrasi yang tinggi, dan ramah lingkungan (Chopade et al., 2015).

Zeolit sintetik LTA memiliki harga yang relatif lebih mahal dibandingkan dengan Zeolit alam karena disintesis dari bahan kimia komersial, belum diproduksi di Indonesia, dan harus diimpor dari luar negeri. Zeolit sintetik LTA dapat disintesis dari bahan yang mengandung silika dan alumina. Beberapa jenis bahan alam yang dapat dipakai sebagai sumber silika alumina pada sintesis zeolit antara lain : sekam padi, CFA (*Coal Fly Ash*), CBA (*Coal Bottom Ash*), Zeolit alam bermutu rendah, dan lainnya.

Provinsi Lampung memiliki sumber Zeolit alam yang melimpah. Data yang bersumber dari Direktorat Pengembangan Potensi Daerah saat tahun 2012 menyatakan bahwa potensi sumber daya alam Zeolit yang ada di Lampung berkisar 31.173.505 ton. Zeolit Alam Lampung (ZAL) memiliki kandungan silika (SiO_2) sebesar 79,106 % berat dan alumina (Al_2O_3) sebesar 15,824% berat sehingga dapat digunakan sebagai bahan baku pengganti silika dan alumina komersial pada sintesis zeolit tipe LTA. (Ginting dkk, 2017

Pada penelitian ini digunakan metode *step change temperature hydrothermal* dimana suhu optimum yang didapat untuk pembentukan kristal zeolit LTA didapatkan pada *Temperature* 1 (T_1) = 90°C dalam waktu 1,5 jam dan *Temperature* 2 (T_2) = 95°C dalam waktu 2,5 jam. Menurut Hui dan Chao (2006) pembentukan kristal zeolit LTA akan semakin bagus jika suhu dinaikkan, akan tetapi jika melewati suhu 95°C mengakibatkan pembentukan kristal zeolit lainnya yaitu kristal zeolit *hydroxy-sodalite*. Selain itu, laju pembentukan kristal dan nukleasi juga akan semakin meningkat seiring dengan waktu yang bertambah, hal ini mengakibatkan pertumbuhan kristal akan semakin cepat. Waktu sintesis yang terlalu lama cenderung akan membuat laju pertumbuhan kristal zeolit menjadi kristal zeolit *hydroxy-sodalite* (Hui dan Chao, 2006).

Penelitian ini mengkaji pengaruh waktu *aging* pada sintesis zeolit LTA dari zeolit alam Lampung (ZAL) dengan menerapkan metode *step change temperature hydrothermal* yang belum dilakukan peneliti lain. *Aging* gel zeolit berpengaruh tidak hanya dalam periode induksi, proses kristalisasi, dan kemurnian produk akhir, tetapi juga jenis dan ukuran zeolit yang terbentuk. Menaikkan waktu *aging* gel akan mempersingkat periode induksi, mempercepat proses kristalisasi, meningkatkan kemurnian produk, dan menurunkan ukuran akhir dari kristal produk. Semakin lama waktu *aging* yang dilakukan, maka akan diperoleh kristal zeolit yang ukurannya lebih kecil. Proses *aging* gel zeolit secara efektif tidak hanya mempersingkat waktu hidrotermal, tetapi juga mengontrol ukuran kristal zeolit (Donėlienė et al., 2010).

2. Metode Penelitian

2.1 Deskripsi Penelitian

Tahapan kerja yang dilakukan pada penelitian ini adalah sebagai berikut: proses *pretreatment* ZAL, pembuatan gel silika alumina, proses *aging*, proses sintesis zeolit LTA, dan karakterisasi zeolit hasil sintesis

2.2 Alat dan Bahan

Alat yang digunakan dalam penelitian ini yaitu *water bath*, *magnetic stirrer*, botol *poly propylen*, ph indikator, desikator, termometer, neraca digital, gelas kimia, oven, erlenmeyer, mortar, kertas saring, ayakan mesh, dan corong gelas.

Sedangkan bahan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu Zeolit alam Lampung (ZAL) yang diperoleh dari CV. Minatama, Bandar

Lampung dengan rasio SiO_2 / Al_2O_3 = 79,106 / 15,824 (%berat), atau rasio mol Si/Al = 1,3/0,15 mol/mol (Ginting dkk, 2017). NaOH (*Pro Analysis*) UNI-CHEM CNA 43/500, serbuk Al_2O_3 (*Pro Analysis*) UNI-CHEM CAS 169/1000, dan akuades didapatkan dari PT. Bratachem, Bandar Lampung.

2.3. Prosedur Penelitian

Dalam penelitian ini, dilakukan sintesis Zeolit LTA dengan variasi waktu a*ging* 0, 15, 30, dan 45 jam dengan komposisi molar gel silika alumina = $1{,}92SiO_2$: Al_2O_3 : $3{,}16Na_2O$: $128H_2O$ (Mirfendereski and Mohammadi, 2016).

1) *Pretreament* ZAL

   ZAL sebanyak 11,377 gram dihaluskan menggunakan mortar dan setelah itu diayak menggunakan ayakan 200 mesh. Lalu aduk ZAL dengan menggunakan *magnetic stirrer*.

2) Pembuatan Larutan Sodium Hidroksida

   Larutkan 10 gram NaOH ke dalam 182,48 gram H_2O. Kemudian larutan NaOH dibagi menjadi 2 dengan jumlah volume yang sama. Beri nama larutan A dan B.

3) Pembuatan Larutan Sodium Silikat (Larutan C)

   Larutkan sebanyak 11,377 gram ZAL ke dalam larutan A diaduk hingga homogen pada suhu 60℃ selama 1 jam menggunakan *magnetic stirrer*.

4) Pembuatan Larutan Sodium Aluminat (Larutan D)

   Larutkan Al_2O_3 sebanyak 6,783 gram ke dalam larutan B, kemudian aduk hingga homogen pada suhu 60℃ selama 1 jam menggunakan *magnetic stirrer*.

5) Pembuatan Larutan Silika Alumina (Larutan E)

   Larutan C ditambahkan ke dalam larutan D dan dicampur hingga terbentuk gel silika alumina yang homogen. Selanjutnya gel didiamkan selama 1 jam.

6) Tahapan *Aging*

   Waktu *aging* yang divariasikan, yaitu 0 jam, 15 jam, 30 jam, 45 jam.

7) Tahapan Sintesis

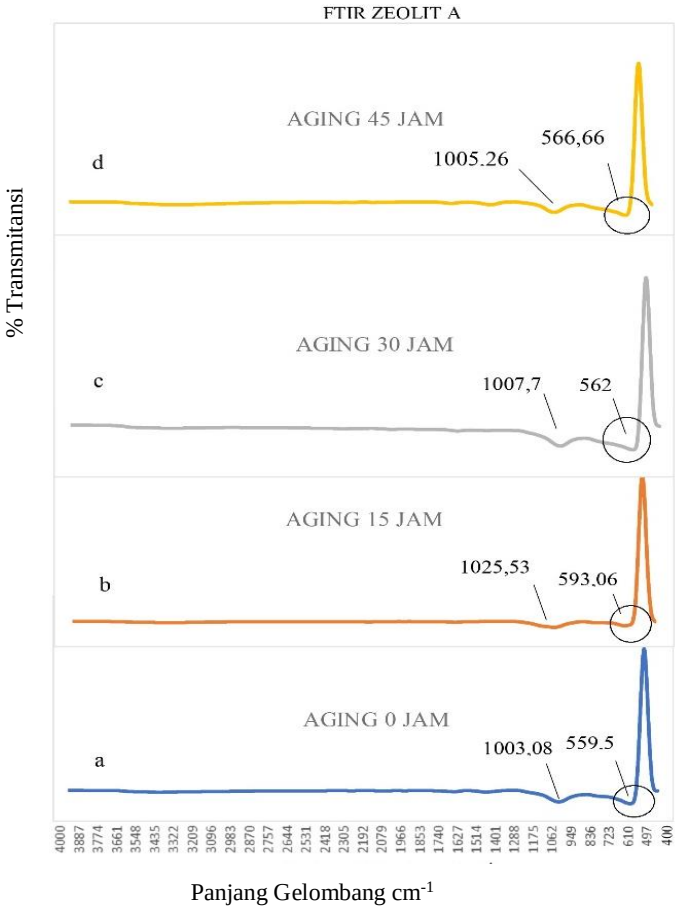
   Gel silika alumina yang telah melalui tahapan *aging* dimasukkan ke dalam botol polipropilen (PP) dan direaksikan secara hidrotermal pada *water bath*. Proses kristalisasi menggunakan aplikasi metode *step change*, yaitu dengan suhu *step change* T_1 = 90℃ dan T_2 = 95℃ dan waktu *step change* t_1 = 1,5 jam dan t_2 = 2,5 jam.

Setelah selesai proses hidrotermal, sampel dikeluarkan dari *water bath* dan selanjutnya disaring menggunakan kertas saring untuk memisahkan padatan dengan *mother liquor*. *Mother liquor* ditampung dan disimpan di dalam botol. Padatan yang merupakan produk dari sintesis ini dicuci beberapa kali menggunakan akuades sampai pH netral dan selanjutnya padatan dikeringkan dalam oven selama 2 jam pada suhu 100℃. Padatan didinginkan di dalam desikator, setelah itu padatan siap untuk dianalisis. Analisis dilakukan berupa: XRD menggunakan alat PHILIPS-*binary* (*scan*) dengan nilai rentang 2Θ = 5 - 50, SEM menggunakan alat ZEISS *electron microscopy* perbesaran 2000 – 10.000x, BET menggunakan alat Quanthachrome instrument, dan FTIR menggunakan alat Shimadzu, Type : IRPrestige 21 dengan bilangan gelombang antara 400-4000 cm^{-1}.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. *Fourier Transmission Infra Red* (FTIR)

Hasil FTIR pada kisaran gelombang 400 - 4000 cm^{-1} untuk Zeolit LTA dapat digunakan untuk mengidentifikasi gugus fungsi yang terdapat dalam sampel Zeolit LTA. Secara umum, zeolit memiliki karakteristik daerah serapan infra merah di sekitar panjang gelombang antara 300-1200 cm^{-1} (Saraswati, 2015). Hasil Karakterisasi FTIR dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. FTIR Zeolit A *Aging*
(a) 0 jam, (b) 15 jam, (c) 30 jam , dan (d) 45 jam

Berdasarkan Gambar 1 maka dapat dibuat perbandingan antara bilangan gelombang FTIR dari Zeolit LTA *aging* 0, 15, 30, dan 45 jam untuk disajikan dalam bentuk Tabel 1 dengan acuan bilangan gelombang Zeolit LTA standar (Saraswati, 2015).

Tabel 1. Karakteristik FTIR Zeolit LTA Sintesis

Zeolit LTA *Aging* (jam)				*Panjang Gelombang (cm^{-1})	Type of IR Bond
0	15	30	45		
1003,08	1025,53	1007,70	1005,26	1000-1500	Vibrasi O-Si-O dan O-Al-O
559,5	593,06	562,0	566,66	550-600	*Double ring*
-	-	-	-	400-500	Vibrasi SiO atau AlO
-	-	-	-	370-400	Pori Terbuka

Sumber: *Saraswati, 2015

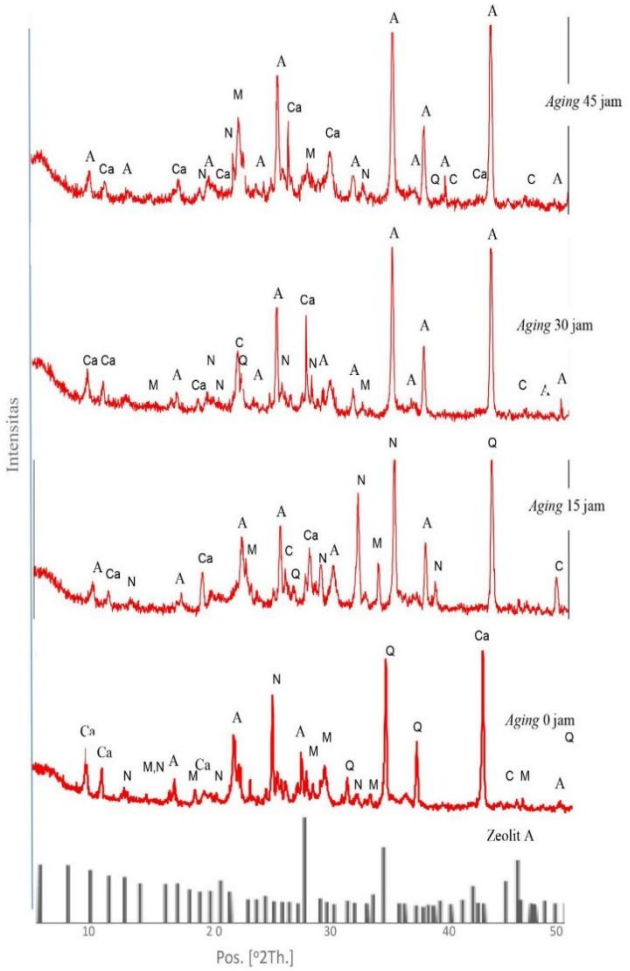
Daerah serapan sekitar 1500-1000 cm^{-1} menunjukkan adanya vibrasi ulur asimetri O—Si—O dan O—Al—O dari kerangka alumino silikat. Serapan pada daerah ini ditunjukkan oleh semua zeolit hasil sintesis. Vibrasi ulur simetri Si—O dan Al—O muncul pada daerah serapan sekitar 600-700cm^{-1}. Salah satu karakter Zeolit LTA adalah memiliki *double rings* yang ditunjukkan dengan munculnya serapan pada daerah 550-600 cm^{-1}, vibrasi tekuk dari Si—O dan Al—O pada kerangka aluminosilikat Zeolit LTA muncul pada daerah serapan sekitar 500 - 400 cm^{-1}. Dari tabel 1 dapat dilihat bahwa Zeolit LTA *aging* 0, 15, 30, dan 45 jam semuanya memiliki ciri vibrasi ulur asimetri O-Si-O dan O-Al-O serta ciri khas dari Zeolit tipe LTA memiliki *double rings*. Umumnya pada struktur zeolit mempunyai dua jalinan yaitu internal dan eksternal. Karakteristik *double rings* merupakan jalinan eksternal antara lapisan zeolit satu dengan yang lain (Saraswati, 2015).

3.2. *X-Ray Diffraction* (XRD)

Hasil analisis XRD ditampailkan pada Gambar 2. Analisis padatan menggunakan XRD dapat memberikan informasi mengenai kekristalan suatu mineral tertentu dan senyawa yang ada dalam suatu sampel. Hal ini dikarenakan setiap mineral mempunyai pola difraktogram yang spesifik. (Saraswati, 2015). Dari hasil analisis XRD Zeolit LTA *aging* 0 jam menunjukkan bahwa mineral penyusun terbesar adalah calcium alluminate silicate, anorthite dan mullite yang ditunjukkan dengan intensitas tajam pada daerah 2Θ = 9,438; 22,479; 25,978; 26,235; dan 31,821 . Sedangkan dari analisis XRD Zeolit LTA *aging* 15, 30 dan 45 jam menunjukkan bahwa mineral penyusun terbesar adalah Zeolit LTA yang ditunjukkan pada nilai 2Θ yang berada di intensitas gelombang kategori Zeolit LTA standar. Nilai intensitas Zeolit LTA hasil sintesis berada pada daerah 2Θ = 10,2; 16,1; 17,7; 24,05; 26,2; 27,2; 29,1; 30,02; 32,6; 35,8; 36,6; 37,3; 39,5; 43,6; 47,4; 48,6; dan 49,8. Dapat terlihat bahwa dari keempat grafik XRD pada Gambar 2, dari interval *range* 0-22 pos 2Θ dan *range* 36-50 pos 2Θ tidak ada pertumbuhan zeolit yang signifikan. Hal ini dikarenakan pada nilai daerah 2Θ = 10,1945; 11,1379; 13,1979; 17,297; 19,0080; 19,8101; 22,3719, dan nilai 2Θ = 36,9184; 44,8314; 46,1908 menunjukkan sampel masih dalam bentuk ZAL, (Ginting dkk, 2017). Grafik mulai menunjukkan lonjakan nilai yang intens di kisaran nilai 2Θ = 22-36, hal ini dapat disimpulkan bahwa pada saat Zeolit LTA tidak di*aging* (0 jam) kristal zeolit belum terbentuk atau terbentuk namun dengan intensitas yang rendah. Zeolit sintesis yang di*aging* 15, 30, dan 45 jam menunjukkan bahwa telah terbentuk Zeolit LTA sebagai produk utama. Hal tersebut menandakan bahan baku ZAL dapat meluruh menjadi produk Zeolit LTA. Intensitas puncak difraksi XRD dari Zeolit LTA yang tidak di*aging* lebih lemah dibandingkan dengan yang telah mengalami proses *aging*. Hal ini disebabkan karena zeolit yang tidak di*aging*, produknya masih berupa amorf (Tong et al, 2014). Selanjutnya dilakukan perhitungan persen kristalinitas relatif terhadap keempat produk Zeolit LTA hasil sintesis. (Rayalu et al., 2005).

Tabel 2. Persen Kristalinitas Relatif Zeolit LTA

Waktu *Aging*	% Kristanillitas
0 jam	19,84
15 jam	22,75
30 jam	34,79
45 jam	66,15



Gambar 2. Hasil XRD Zeolit LTA *Aging* 0, 15, 30, dan 45 jam dibandingkan dengan Zeolit A standar (Yanagida, 1973)

Keterangan Gambar :

A = Zeolit LTA ($Al_{12}Na_{12}O_{48}Si_{12}$)

M = Mullite ($Al_{2,34}O_{4,83}Si_{0,66}$)

C = Corondum (Al_2O_3)

Ca = Calcium Aluminum Silicate Ca ($Al_2O_8Si_2$)

N = Anorthite ($Al_2CaO_8Si_2$)

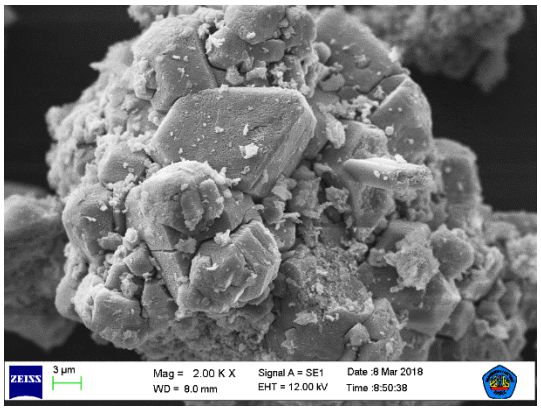
Q = Quartz (SiO_2)

Dari hasil perhitungan persen kristalinitas Zeolit LTA dapat terlihat jelas bahwa terdapat kenaikan persen kristalinitas dari Zeolit LTA dengan peningkatan waktu *aging*. Hal ini disebabkan karena peningkatan waktu *aging* akan mendorong percepatan proses kristalisasi zeolit, peningkatan pesat pada laju kristalisasi, dan menaikkan jumlah inti kristal yang terbentuk. *Aging* yang dilakukan pada suhu lingkungan akan meningkatkan interaksi antar spesies, yang kemudian akan menyebabkan terjadinya peningkatan konsentrasi spesies prekursor pada proses nukleasi, selanjutnya akan mempercepat nukleasi. Benih dari kristal zeolit terbentuk dalam gel selama proses *aging*. Inti kristal secara dominan terbentuk selama proses pengendapan hidrogel dan selama *aging* hidrogel, hal ini terjadi karena adanya reaksi dari spesies yang reaktif pada area permukaan dan daerah dibawah permukaan partikel gel. Inti dapat tumbuh dalam kontak dengan larutan, sehingga harus dilepaskan dari matriks gel pada awal proses kristalisasi. Dengan adanya peningkatan waktu *aging* maka akan memungkinkan terbentuknya lebih banyak inti dekat dengan permukaan. Oleh karena itu, keseluruhan reaksi menjadi lebih cepat, ukuran produk kristal yang terbentuk menjadi lebih kecil, dan jumlah spesifiknya meningkat. (Donėlienė et al., 2010; Chen et al., 2007; Palcic et al., 2012). Dapat disimpulkan bahwa gel sodium alumina silika dapat memproduksi lebih banyak kristal pada waktu *aging* yang lebih lama.

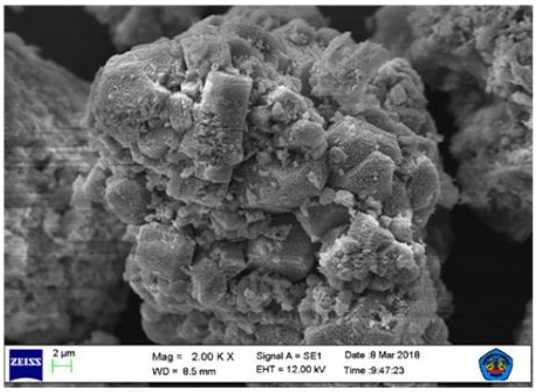
3.3. *Scanning Electron Microscopy* (SEM)

Hasil analisis SEM ditampilkan pada Gambar 3. Dari hasil analisis SEM yang dihasilkan dapat terlihat adanya bentuk morfologi yang sesuai dengan Zeolit LTA yaitu berbentuk kubik. Pada Zeolit LTA *aging* 30 dan 45 jam sebagian besar produk yang terbentuk adalah kristal dengan sebagian kecil terdiri dari amorf. Hal ini dapat dijelaskan dari hasil XRD dan perhitungan persen kristalinitas produk Zeolit LTA. Pada Zeolit LTA *aging* 30 dan 45 jam diperoleh persen kristalinitas produk Zeolit LTA yang relatif tinggi dibandingkan dengan zeolit LTA *aging* 0 dan 15 jam,. Hal ini mengindikasikan bahwa saat proses *aging* gel zeolit pada suhu ruang, telah terbentuk inti kristal zeolit.

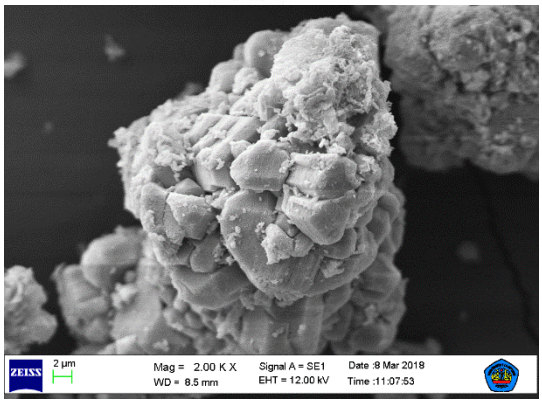
Dari hasil analisis SEM dapat terlihat bahwa ukuran dari produk semakin mengecil seiring dengan menaikkan waktu *aging*. Diperoleh dari hasil SEM ukuran produk Zeolit LTA *aging* 0 jam adalah 10,58 μm. Untuk ukuran produk Zeolit LTA *aging* 15, 30 dan 45 jam berturut-turut adalah 7,349 μm; 4,179 μm; dan 2,268 μm. Hal ini disebabkan karena saat menaikkan waktu *aging* dapat menyebabkan penyisipan silika tambahan menjadi padatan aluminosilikat dan akan meningkatkan jumlah inti yang lebih kecil sehingga memberi hasil zeolit lebih baik dan lebih tinggi (Kovo and Holmes, 2010). Hasil ini menunjukkan bahwa semakin lama waktu *aging* akan mendorong pembentukan kristal Zeolit LTA dengan ukuran yang lebih kecil.



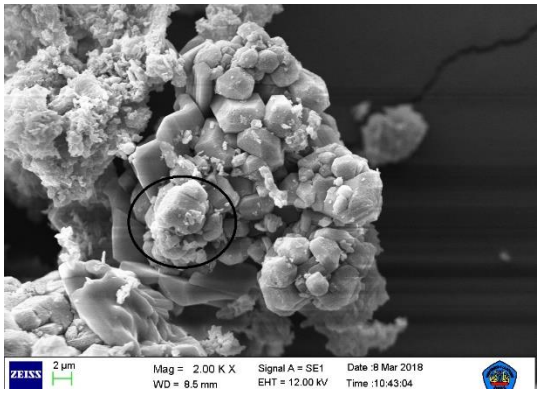
(a)



(b)



(c)



(d)

Gambar 3. Hasil SEM Zeolit A *Aging* (a) 0 jam, (b) 15 jam, (c) 30 jam, dan (d) 45 jam

3.4. Brunaur, Emmet, and Teller (BET)

Hasil analisis BET ditampailkan pada Tabel 3, Gambar 4, dan Gambar 5. Analisis BET dilakukan untuk mengetahui luas permukaan spesifik, volume pori, dan diameter pori dari produk yang dihasilkan.

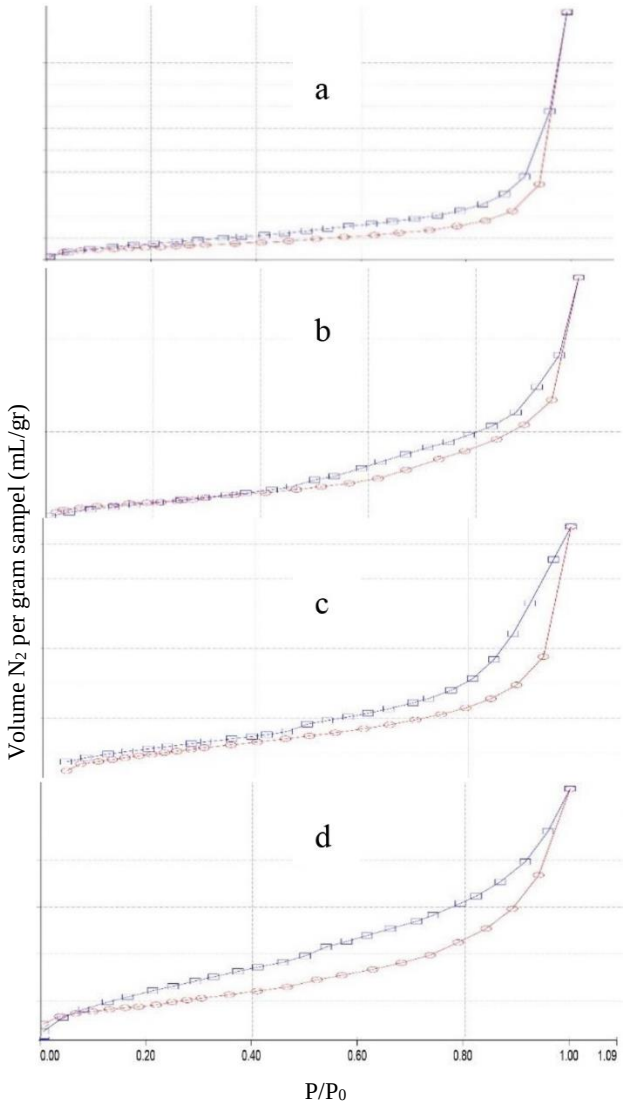
Tabel 3. Hasil Analisis BET Zeolit LTA sintesis

Run	Variasi Waktu *Aging* (jam)	Luas Permukaan Total (m^2/g)	Total Volume Pori (cc/g)	Diameter Pori Rata - Rata (Å)
1	0	8,617	0,06989	162,224
2	15	34,82	0,1645	94,407
3	30	14,784	0,04643	61,9881
4	45	12,913	0,03417	52,9207

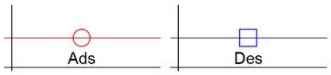
Berdasarkan data pada Tabel 3. dapat dilihat bahwa semakin lama waktu *aging* maka cenderung semakin besar luas permukaan. Luas permukaan terbesar diperoleh pada variasi waktu *aging* 15 jam yaitu 34,82 m^2/g. Sedangkan luas permukaan terkecil diperoleh pada waktu *aging* 0 jam yaitu 8,617m^2/g. Semakin besar luas permukaan zeolit maka akan semakin besar kemampuannya untuk berinteraksi dan berikatan dengan molekul – molekul air dalam etanol. Kemudian volume pori terbesar diperoleh pada Zeolit LTA dengan variasi waktu *aging* 15 jam yaitu sebesar 0,1645 cc/g. sedangkan volume pori terkecil diperoleh pada variasi waktu *aging* 45 jam yaitu sebesar 0,03417 cc/g. Semakin besar volume pori maka daya tampung senyawa yang terjerap dalam pori-pori Zeolit LTA akan semakin besar juga (Khaidir, 2011).

Diameter pori rata – rata terbesar dimiliki oleh sampel pada variasi waktu *aging* 0 jam yaitu sebesar 162,224 Å. Sedangkan diameter pori terkecil dimiliki oleh sampel dengan variasi waktu *aging* 45 jam yaitu sebesar 52,9207 Å. Hal tersebut menunjukkan Zeolit LTA yang terbentuk merupakan Zeolit LTA yang memiliki kisaran diameter *mesopori* (2-50 nm) atau (20 Å-500 Å) (Gregg & Sing 1982).

Berdasarkan Gambar 4, dapat dilihat bahwa isotherm adsorpsi pada penelitian ini mengikuti tipe ketiga, dimana pada titik awal grafik tidak ada lonjakan drastis untuk kenaikan interval seperti pada isotherm tipe kedua dan karenanya tidak ada formasi monolayer yang dapat diidentifikasi.



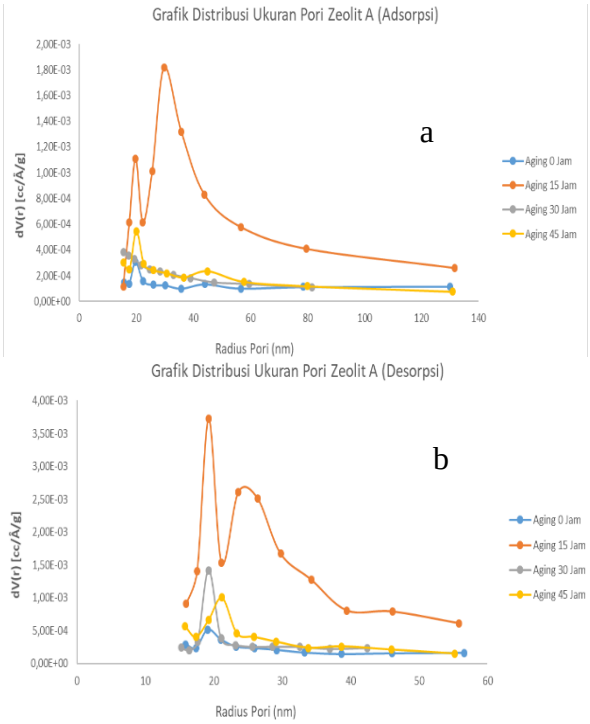
Gambar 4. Grafik Isoterm Adsorpsi Zeolit A *Aging* (a) 0 jam, (b) 15 jam, (c) 30 jam, dan (d) 45 jam

Keterangan: 

Adsorpsi Isotherm tipe ketiga ini interaksi adsorben-adsorbat untuk kondisi ini relatif lemah dan molekul yang teradsorpsi mengelompok di sekitar lokasi yang paling cocok pada permukaan padat tidak berpori atau berpori. Pada isotherm tipe ketiga jumlah teradsorpsi tetap terbatas pada tekanan saturasi (Thommes, 2015). Karakteristik dari *Hysteresis loops* pada penelitian ini mengikuti jenis H3 *loop*. Ada dua ciri khas dari tipe H3 loop, yaitu: cabang adsorpsi menyerupai isoterm Tipe II, batas bawah cabang desorpsi biasanya terletak pada rongga yang diinduksi oleh P / P_0 (Thommes, 2015).

Berdasarkan Gambar 4, menunjukkan bahwa isoterm adsorpsi nitrogen di semua sampel Zeolit LTA memperlihatkan pola yang sejenis dimana ada lonjakan kenaikan secara cepat pada tekanan relatif (P/P_0) rendah, lalu melambat pada pertengahan dan adanya lonjakan kenaikan dengan cepat pada P/P_0 mendekati satu. Kenaikan pertama diakibatkan oleh molekul gas yang teradsorp berkontak dengan daerah berenergi pada permukaan padatan. Proses pengisian ini membentuk lapisan tunggal, dimana pertambahan molekul gas terjadi saat permukaan diisi oleh molekul gas dan membentuk lapisan tunggal pada daerah P/P_0 lebih tinggi. Pertambahan ini berdampak terbentuknya lapisan berlapis (*multilayer*) saat akhir pengisian, terjadi kondensasi melekul gas yang teradsorp, selain itu juga terlihat adanya *loop* histerisis pada daerah pertengahan (Hartanto, 2011). Percabangan antara garis desorpsi dan adsorpsi disebut histerisis, percabangan ini dapat terjadi dikarenakan adanya kondensasi yang tertunda sehingga mengakibatkan fasa adsorpsi menjadi metastabil, umumnya peristiwa ini dikaitkan dengan kondensasi kapiler. Kondensasi yang tertunda mengakibatkan adsorpsi yang bercabang dan membuat loop histerisis. Hal ini dapat terjadi karena tidak adanya kesetimbangan termodinamika yang tercapai selama proses adsorpsi berlangsung (Thommes, 2015).

Karakteristik padatan berpori meso juga dapat dilihat dari data grafik distribusi ukuran pori dengan menggunakan metode BJH (*Barret, Joiner, Halenda*) adsorpsi dan desorpsi pada Gambar 5.



Gambar 5. Grafik Distribusi Ukuran Pori Zeolit A (a) Adsorpsi dan (b) Desorpsi

Berdasarkan Gambar 5. dapat dilihat bahwa semua sampel waktu *aging* 0 jam, 15 jam, 30 jam, dan 45 jam menunjukkan pori berukuran mesopori yang teramati pada grafik distribusi ukuran pori (a) adsorpsi dan (b) desorpsi dengan terus menunjukkan kenaikan pada diameter pori sekitar 15 – 19,7 nm. Pada variasi waktu *aging* 0 jam terjadi kenaikan perubahan volume pori per gram sampel pada diameter pori 15,6 – 19,7 nm. Kemudian pada variasi waktu *aging* 15 jam terjadi kenaikan perubahan volume pori per gram sampel pada diameter pori 15,4 – 19,2 nm, sedangkan pada waktu *aging* 30 jam terjadi kenaikan perubahan volume pori per gram sampel pada diameter pori 15,4 sampai 17,68 nm dan 15,5 sampai 17,38 nm pada waktu *aging* 45 jam. Hasil Sintesis Zeolit LTA *Aging* 30 dan 45 jam menunjukkan range distribusi ukuran pori yang lebih sempit dibandingkan dengan *aging* 0 jam dan 15 jam, yang berarti pori bersifat lebih selektif dalam adsorpsi larutan etanol-air.

4. Kesimpulan

Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa semua hasil sintesis pada beragam waktu *aging* telah terbentuk zeolit LTA dengan persen kristalinitas tertinggi sebesar 66,15% pada waktu *aging* 45 jam. Hasil analisis FTIR menunjukkan semua hasil sintesis memiliki sturktur *double rings* yang merupakan ciri khas Zeolit LTA dengan bilangan gelombang inframerah di rentang 550-600 cm^{-1} .
Hasil analisis SEM menunjukkan adanya morfologi Zeolit LTA yang berbentuk kubus. Selain itu diperoleh ukuran kristal yang kecil sebesar 2,268 μm.
Hasil analisis BET menunjukkan ukuran pori Zeolit LTA yang dihasilkan tergolong kedalam daerah mesopori (20Å - 500Å) yang diidentifikasi dengan menggunakan metode BJH (*Barret, Joiner, Halenda*) dan zeolit sintesis memiliki luas permukaan terbesar pada *aging* 30 jam dengan nilai 34,82 m^2/g. Selain itu, hasil analisis BET menunjukkan adsorpsi isotherm mengikuti model adsorpsi isoterm tipe ketiga.

5. Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Universitas Lampung yang telah memberi dukungan finansial terhadap penelitian ini melalui program Penelitian Unggulan Perguruan Tinggi (PUPT) Unila 2018 dengan kontrak No. 1480/UN26.21/PN/2018.

6. Daftar Pustaka

Chen, Hongliang, Chunshan Song, Weishen Yang. 2007. *Effect of aging on the synthesis and performance of silicate membranes on silica tubes without seeding*. The Pennyselvenia State University, 206 Hosler Building,University Park : U.S.A.

Chopade, V. J., Khandetod, Y. P., and Mohod, A. G. 2015. *Dehydration of Ethanol-Water Mixture Using 3a Zeolit Adsorbent*, International Journal of Emerging Technology and Advanced Engineering, Vol 5, Issue 11

Donėlienė, Jolanta., Vaiciukynienė, Danutė., and Kantautas, Aras. 2010. *The Influence of Alumosilicate Gel Aging on the Synthesis of NaX Zeolite*, Scientific Journal of Riga Technical University, Vol. 22.

Ginting, Simparmin Br, Sebastian Djoni Syukur, dan Yeni Yulia. 2017. *Kombinasi Adsorben Biji Kelor – Zeolit Alam Lampung untuk Meningkatkan Efektivitas Penjerapan Logam Pb dalam Air secara Kontinu pada Kolom Fixed Bed Adsorber*. Jurnal Rekaya Proses. Vol.11,No.1, hal.1-11. UGM:Yogyakarta.

Gregg SJ & Sing KSW. 1982. *Adsorption, Surface Area and Porosity*.2nd Edition, London: Academic Press.

Hartanto, Djoko., Tri Esti Purbaningtias, Hamzah Fansuri, Didik Prasetyoko. 2011. *Karakterisasi Struktur Pori dan Morfologi ZSM-2 Mesopori yang Disintesis dengan Variasi Waktu Aging*. Jurnal ILMU DASAR, Vol.12 No.1 80-90 : Institut Teknologi Sepuluh November.

Hui, K. S., and Chao, C. Y. H. 2006. *Effects of step-change of synthesis temperature on synthesis of zeolite 4A from coal fly ash*, Microporous and Mesoporous Materials 88: 145–151.

Khaidir. 2011. *Modifikasi Zeolit Alam Sebagai Material Molecular Sieve dan Aplikasinya pada Proses Dehidrasi Bioetanol.* Tesis. Institut Pertanian Bogor.

Kovo, A.S. and S.M. Holmes, 2010. *Effect of aging on the synthesis of kaolin-based zeolite Y from ahoko Nigeria using a novel metakaolinization technique*. J. Dispersion Sci. Technol., 31: 442-448.

Mirfendereski, Mojtaba., and Mohammadi, Toraj. 2016. *Effects of Synthesis Parameters on the Characteristics of NaA Type Zeolite Nanoparticles*, Proceedings of the World

Congress on Recent Advances in Nanotechnology, No. 113.

Palcic, Ana, Lavoslav Sekovanic, Boris Subotic, Aand Josip Bronic. 2012. *Zeolite A Synthesis under Dynamic Conditions, after Hydrogel Aging*. University of Zagreb, Geothermal Facility, Hallerova Aleja : Croatia.

Rayalu, S.S., J.S. Udhoji, S. U. Meshram, R. R. Naidu, and S. Devotta. 2005. *Estimation of Cristalinity in Flyash-based Zeolite-A using XRD and IR Spectroscopy*. Environment Materials Unit, National Environmental Engineering Research Institute. Nagpur 440 020 : India.

Saraswati, Indah. 2015. *Zeolite-A Synthesis from Glass*. Jurnal Sains dan Matematika. Vol. 23 (4): 112-115. ISSN : 0854-0675. Lecturer in Chemistry Department, Faculty of Medicine. Diponegoro University : Semarang.

Taufanny, F., Soewarno, N., Yuwono, K., Ardiyanta, D., Eliana, dan M., Girsang, I.R. 2015. *Feed Plate and Feed Adsorbent Temperature Optimisation of Distillation – Adsorption Process to Produce Absolute Ethanol*. Modern Applied Science; Vol. 9, No. 7, ISSN 1913-1844 E-ISSN 1913-1852.

Thommes, Matthias., Katsumi Kaneko, Alexander V. Neimark, James P. Olivier, Francisco Rodriguez-Reinoso, Jean Rouquerol, and Kenneth S.W. Sing. 2015. *Physisorption of Gases, with Special Reference to the Evaluation of Surface Area and Pore Size Distribution (IUPAC Technical Report)*. Pure Appl. Chem: IUPAC & De Gruyter.

Yanagida, R.Y., Amaro, A.A., Seff, K., *J. Phys. Chem.* 1973. Sodium Aluminium Sillicate. 01-071-1557. ICSD Pattern Inorganic Mineral Zeolit .