

PENGARUH RASIO Si/Al PADA SINTESIS ALUMINASILIKAT MCM-41 DARI FLY ASH BATUBARA SEBAGAI ADSORBEN PADA LIMBAH GAS CO₂

EFFECT OF Si/Al RATIO ON ALUMINASILIKAT SYNTHESIS OF MCM - 41 FROM COAL FLY ASH AS ADSORBENT IN WASTE CARBON DIOXIDE

Darmansyah¹ Novrit Jhon Bathara Simanullang²

Jurusan Teknik Kimia - Fakultas Teknik - Universitas Lampung, Jalan Sumantri Brojonegoro No. 01 -
Lampung 35141

Penulis Korespondensi : email Darmansyah82@gmail.com

ABSTRAK

Penelitian ini dilatarbelakangi oleh limbah abu layang yang dihasilkan oleh PLTU cukup besar sehingga dapat menimbulkan pencemaran, oleh karena itu limbah perlu dimanfaatkan dan digunakan sebagai bahan baku sintesis material MCM-41. Tujuan penelitian ini adalah mensintesis material MCM-41 rasio Si/Al, mengetahui karakteristik dan uji adsorpsi material MCM-41 sebagai adsorben limbah gas CO₂. Pada penelitian ini dilakukan sintesis material aluminasilikat MCM-41 dari *flyash* batubara dengan perbandingan NaOH 1:1,2 terhadap jumlah *flyash* serta variasi rasio Si/Al 6, 8, 10 mol/mol. Hasil sintesis material MCM-41 ini dikarakterisasi dengan XRD, SEM-EDX, BET. Hasil sintesis menunjukkan rasio Si/Al 6 merupakan variasi rasio terbaik didasari pada analisis XRD dan uji adsorpsi limbah gas CO₂. Material dengan rasio Si/Al 6 memiliki *surface area* 0.994 m²/g, diameter pori 34.375 Å, dengan total volume pori 0.008 cc/g. Hal ini mengindikasikan adanya material mesopori namun tidak sesuai dengan karakteristik material MCM-41.

Kata kunci : Aluminasilikat MCM-41, CO₂, kinetika adsorpsi, rasio Si/Al, zeolit

ABSTRACT

This research is motivated by the waste fly ash produced by the power plant large enough to cause pollution, therefore the waste needs to be harnessed and used as raw material for the synthesis of MCM-41 material. The purpose of this study was to synthesize material MCM-41 ratio Si / Al, knowing characteristic and test material adsorbs MCM-41 as adsorbent waste CO₂ gas. In this research, synthesis of MCM-41 material aluminasilikat of coal flyash with NaOH ratio of 1: 1.2 to the amount of flyash and variations in the ratio of Si / Al 6, 8, 10 mol/mol. The result of the synthesis of MCM-41 material is characterized by XRD, SEM-EDX, BET. The results demonstrate the synthesis of Si / Al ratio 6 is the best ratio variations based on XRD analysis and testing of waste CO₂ gas adsorption. Si / Al ratio 6 has a surface area of 0994 m² / g, a pore diameter of 34 375 Å, with a total pore volume of 0.008 cc / g. This indicates a mesoporous material but not in accordance with the characteristics of the MCM-41 material

Keywords : adsorption kinetics, carbondioxide, , MCM-41, Si/Al ratio, zeolite

PENDAHULUAN

Penggunaan batubara sebagai energi alternatif di Indonesia cenderung meningkat pesat setiap tahunnya. Data menunjukkan bahwa penggunaan batubara di Indonesia mencapai 14,1% dari total penggunaan energi lain pada tahun 2003. Diperkirakan penggunaan energi batubara ini akan terus meningkat hingga 34,6% pada tahun 2025 (Fatakh, 2008). Salah satu penggunaan batubara sebagai sumber energi adalah pada industri Pembangkit Listrik Tenaga Uap. Proses pembakaran batubara di dalam suatu boiler pembangkit listrik menghasilkan produk limbah *Fly Ash* Batubara (FAB).

Saat ini jumlah limbah abu layang batubara (*fly ash*) yang dihasilkan dari proses pembakaran batubara di Pembangkit Listrik Tenaga Uap (PLTU) sangat besar, termasuk di Indonesia (Fatakh, 2008). Limbah abu layang batubara yang relatif besar ini menimbulkan dampak pencemaran yang berbahaya. Dampak lingkungan terbesar dari penggunaan bahan bakar batubara adalah pelepasan abu sisa

pembakaran berupa abu layang (*fly ash*) maupun abu dasar (*bottom ash*) serta polutan polutan berbahaya lainnya seperti CO₂, NO_x, CO, SO₂ dan hidrokarbon (Molina dan Poole, 2004). Oleh karena itu perlu dipikirkan suatu cara yang efektif untuk mengatasi dampak negatif dari limbah abu layang tersebut yang salah satunya adalah dengan memanfaatkannya sebagai bahan baku pembuatan bahan - bahan lain yang lebih bermanfaat (Londar dkk, 2009).

Pada penelitian ini material aluminasilikat MCM-41 dari *fly ash* digunakan sebagai adsorben gas buangan pada limbah gas. Adsorben Al-MCM-41 ini dibuat dengan variasi Si/Al 6, 8, 10 dan merupakan jenis zeolit berkadar Si tinggi yang bersifat hidrofobik, karena sifatnya yang hidrofobik, material ini mampu menyerap senyawa gas yang non polar. Tujuan penelitian ini adalah melakukan sintesis aluminasilikat MCM-41 dengan variasi rasio Si/Al 6, 8, dan 10, mengetahui karakteristik dari material aluminasilikat MCM-41 yang dibentuk, dan melakukan uji daya adsorpsi aluminasilikat MCM-41 di BALISTAN Bandar Lampung.

BAHAN DAN METODE

Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. *Fly ash* batubara sebagai sumber dan alumina, *fly ash* ini berasal dari PLTU Tarahan.
2. Larutan NaOH 2 M
3. NaOH sebagai larutan basa organik.
4. Aquades
5. Aquades berfungsi sebagai pencuci hasil sintesis.
6. CTAB berfungsi sebagai surfaktan yang bertindak sebagai *template* pengarah (*precursor*) susunan hexagonal dari MCM-41 dengan membentuk misel.
7. Aqua DM
8. 2% HNO₃
9. Berfungsi sebagai pengatur pH yang diinginkan.

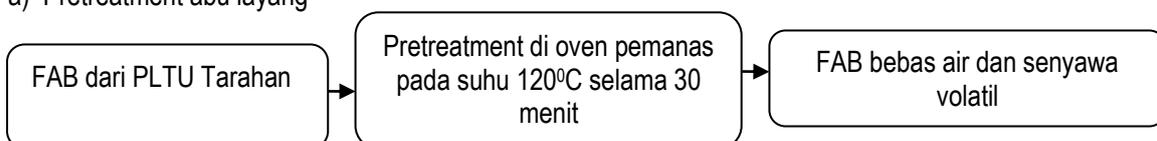
Alat

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah :

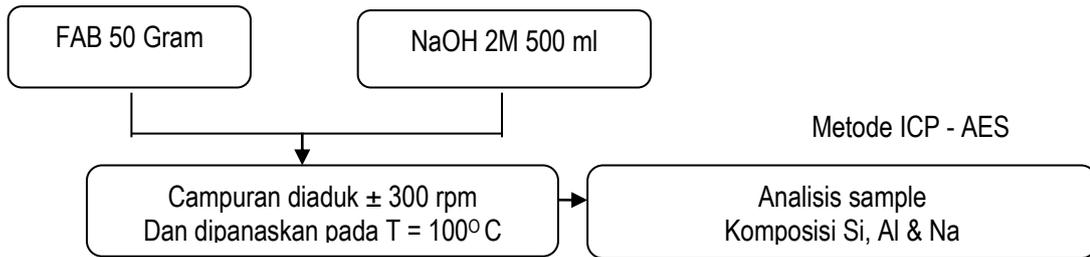
1. Furnace
2. Oven pemanas
3. Wadah polietilen
4. Gelas ukur
5. Pipet tetes
6. Corong kaca
7. Cawan porselen
8. Kertas saring
9. Indikator kertas pH
10. Neraca Digital berfungsi untuk menimbang setiap berat bahan yang akan digunakan dalam proses sintesis.
11. XRD, SEM - EDX, BET Berfungsi untuk karakterisasi produk yang dihasilkan dari proses sintesis.
12. Oven
13. Media penyaring dengan ukuran lubang sekitar 0,45 µm
14. H.G 520 (Gas Analyzer)
15. Tabung gas (CO dan CO₂), tabung adsorben

Metode

a) Pretreatment abu layang

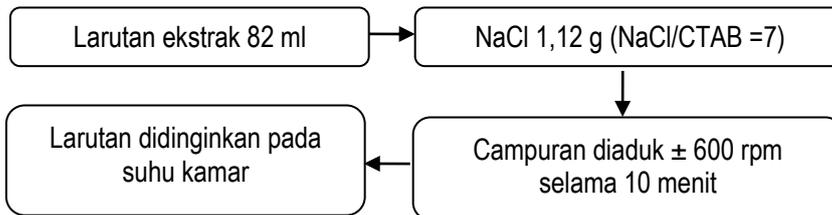


b) Ekstraksi sumber Si

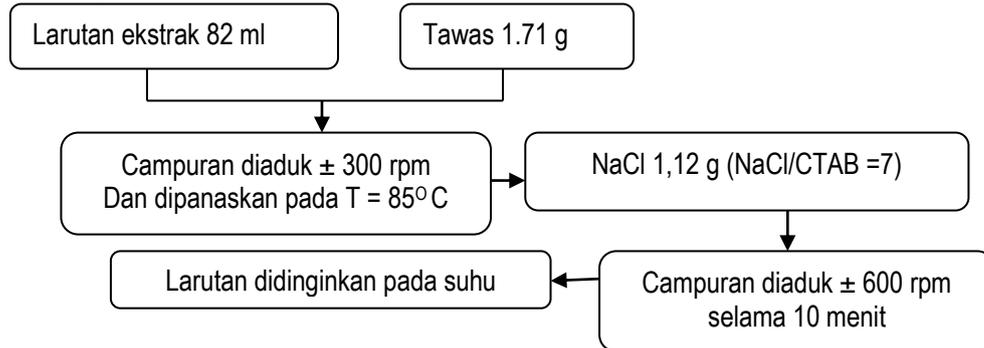


c) Persiapan pembuatan larutan MCM-41

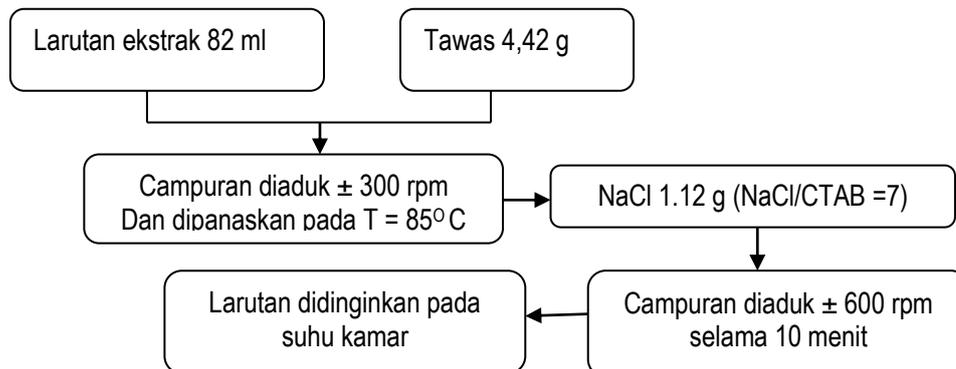
Run 1 Si/Al = 10 (Larutan Ekstrak)



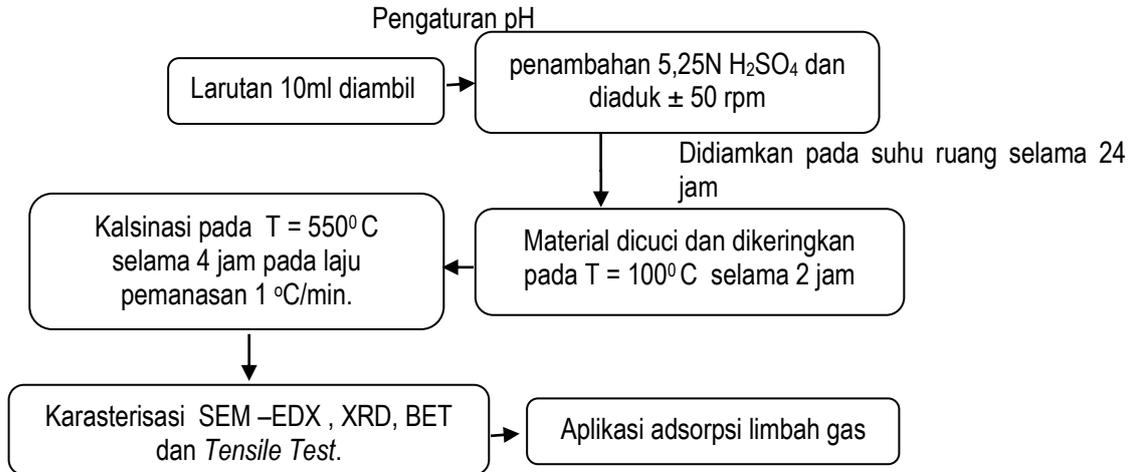
Run 2 Si/Al = 8



Run 3 Si/Al = 6



d) Produksi Al MCM-41 dan Aplikasi
(Untuk Run 1, 2,3)



(e) Pengolahan Limbah Gas

Aplikasi material sebagai adsorben limbah gas dilakukan di laboratorium Balai Riset dan Standardisasi Industri (BALISTAN) Bandar Lampung, Provinsi Lampung (BALISTAN, 2015).

Alat uji yang digunakan berupa rangkaian alat antara lain :

a) H-G 520

Sejenis *gas analyzer* yang mampu membaca konsentrasi beberapa gas yang terhubung ke sistemnya.

b) Tabung gas

Berisi gas karbonmonoksida, karbondioksida dan lain lain.

c) Tabung adsorben

Wadah adsorben yang terhubung dengan H-G 520 dan tabung gas melalui pipa. Tabung ini mempunyai diameter +/- 3,5 cm dan tinggi +/- cm.

Pengujian adsorpsi gas ini dilakukan tanpa adsorben dan dengan adsorben pada tabung adsoben.

Hal ini dilakukan untuk mendapatkan persen adsorpsi material tersebut.

Adapun prosedur untuk uji adsorpsi gas adalah sebagai berikut :

1. Alat dirangkai secara sempurna yaitu tabung gas, tabung adsorben dan H-G520.
2. Gas dialirkan melalui *valve* dengan bukaan 100% selama 10 detik dan kemudian ditutup kembali.
3. Hasil yang terbaca pada H-G520 dicatat

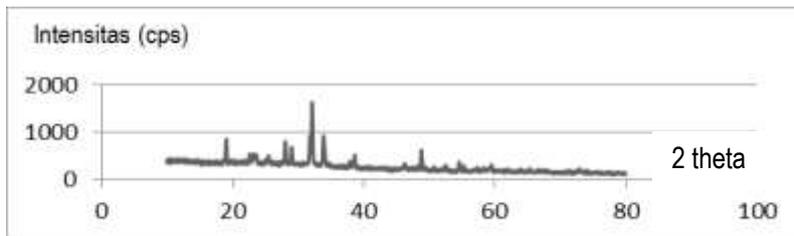
Untuk setiap uji perlakuannya hampir sama, perbedaannya pada tabung adsoben (yaitu tanpa dan dengan adsorben)

HASIL DAN PEMBAHASAN

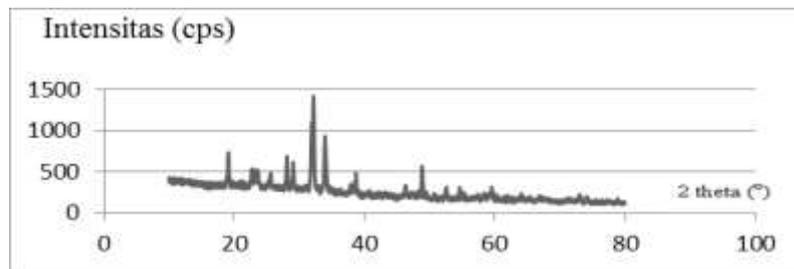
Karakterisasi X-ray Diffraction (XRD)

Hasil Karakterisasi Difraksi sinar-X (XRD) yang dilakukan di Laboratorium Terpadu UIN (Universitas Islam Negeri) Jakarta dapat dilihat pada Gambar 1 – 3. Hasil karakteristik XRD pada gambar 1-3 mengindikasikan bahwa material MCM-41 yang diinginkan tidak terbentuk karena tidak sesuai dengan pola grafik XRD MCM-41 standard dimana bisa dilihat pada gambar diatas bahwa 2 theta (°) antara 0 – 10 tidak ada terbentuk fasa kristal maupun amorf seperti yang ditunjukkan pada gambar 4 pada bab 2. Hal ini terjadi karena pada penelitian ini ada penambahan NaCl yang berfungsi untuk meningkatkan kristalinitas dan stabilitas hidrotermal MCM-41 yang dihasilkan (Suyanta dkk, 2012). Penambahan NaCl ini juga didukung oleh penelitian Parfenov dan Kirik (2003) yang mengatakan bahwa penambahan suatu garam dapat meningkatkan kristalinitas MCM-41. Hal itu disebabkan karena dalam sintesis MCM-41

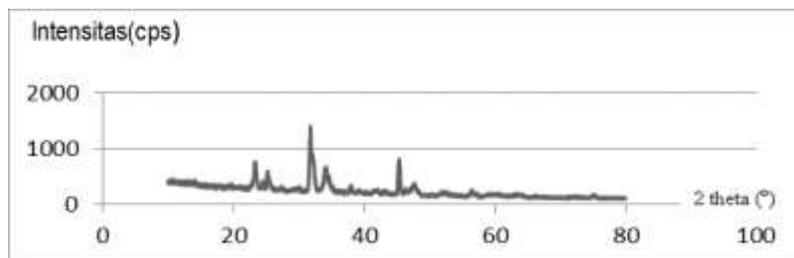
pembentukan dinding pori diawali dengan interaksi supramolekuler antara surfaktan kationik dengan berbagai polianion silikat. Dalam sistem silikat-surfaktan tersebut terdapat kelebihan muatan-muatan negatif yang saling menolak sehingga mengganggu polimerisasi silikat, oleh karenanya diperlukan kompensator bermuatan positif yang dapat terdifusi mendekati situs-situs muatan negatif. Secara umum, hasil karakteristik XRD pada Gambar 1 menunjukkan bahwa adanya puncak dan gundukan dimana puncak menginformasikan terbentuknya fasa kristal sedangkan gundukan menginformasikan terbentuknya fasa amorf. Besarnya rasio Si/Al pada proses sintesis mempengaruhi tingginya intensitas pada 2 theta yang sama dari hasil karakteristik XRD, dapat dilihat pada Tabel 1.



Gambar 1. Hasil karakteristik Difraktogram XRD rasio Si/Al 6



Gambar 2. Hasil karakteristik Difraktogram XRD rasio Si/Al 8



Gambar 3. Hasil karakteristik Difraktogram XRD rasio Si/Al 10

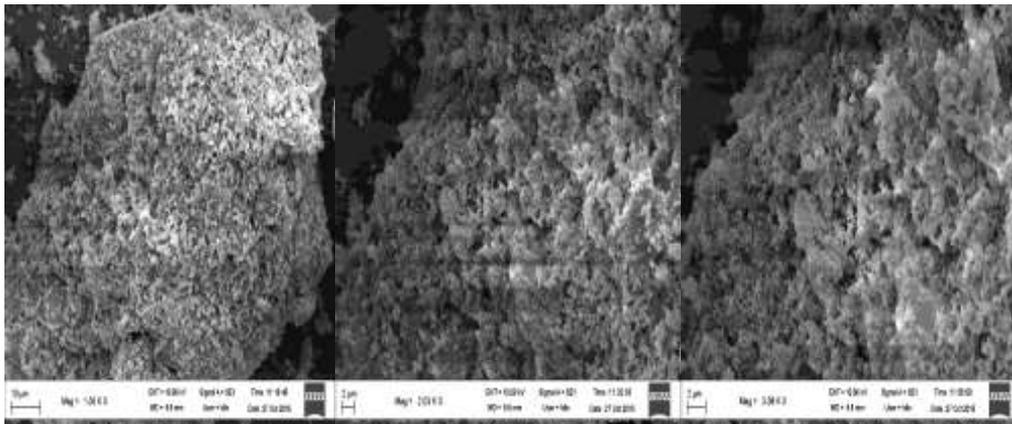
Tabel 1. Hasil karakteristik XRD

Rasio Si/Al 6		Rasio Si/Al 8		Rasio Si/Al 10	
2 theta (°)	Intensitas (Cps)	2 theta (°)	Intensitas (Cps)	2 theta (°)	Intesitas (Cps)
10.16	410	10.16	382	10,16	362
11	392	11	394	11	425
11.42	404	11.42	400	11,42	392
12.06	432	12.06	380	12,06	362
13	406	13	358	13	392
14	392	14	382	14	348

Dari Tabel 1 terlihat bahwa sampel dengan rasio Si/Al 6 memiliki intensitas yang lebih tinggi dibandingkan dengan rasio Si/Al 8 dan 10. Hal ini memperlihatkan intensitas cenderung meningkat dengan menurunnya rasio Si/Al. Berdasarkan karakteristik XRD ini dapat disimpulkan bahwa material dengan rasio Si/Al 6 lebih baik dibandingkan dengan rasio 8 dan 10.

SEM (Scanning Electron Microscopy)

Analisis SEM dilakukan di laboratorium kimia biomassa fakultas MIPA (Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam) Universitas Lampung, dimana analisis SEM merupakan analisis untuk mengetahui struktur morfologi permukaan dari aluminasilika MCM-41. Material yang dianalisis adalah material Si/Al 6 karena dianggap yang paling baik. Gambar SEM yang dihasilkan merupakan hasil perbesaran sebanyak 3 kali seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Hasil SEM (a) perbesaran 1, (b) perbesaran 2, (c) perbesaran 3

Berdasarkan hasil analisis SEM pada Gambar 2 terlihat bahwa ketiga perbesaran gambar terlihat bahwa sampel yang dihasilkan memiliki struktur morfologi identik yang terdiri dari amorf dan sedikit kristal, meskipun morfologi material yang terbentuk tidak sesuai dengan morfologi material MCM-41.

Adsorpsi – Desorpsi Nitrogen

Karakterisasi Adsorpsi–Desorpsi Nitrogen dilakukan di Laboratorium Teknik Kimia ITB Bandung. Analisis dilakukan pada sampel yang terbaik berdasarkan hasil analisis XRD yaitu sampel dengan rasio Si/Al 6. Dari hasil analisis didapatkan bahwa sampel MCM-41 yang terbentuk memiliki *surface area* 0.994 m²/g, diameter pori 34.375 Å, dengan total volume pori 0.008 cc/g. Berdasarkan hasil analisis BET material yang dihasilkan ini memiliki diameter pori, luas permukaan dan volume pori yang tidak sesuai dengan karakteristik material MCM-41. Hal ini disebabkan banyaknya *amorf* yang terbentuk pada material. Namun, berdasarkan diameter pori material 34.375 Å termasuk dalam material mesopori yang memiliki rentang ukuran diameter pori sebesar 20 Å- 500 Å.

Aplikasi limbah gas

Aplikasi material sebagai adsorben limbah gas dilakukan di laboratorium Balai Riset dan Standardisasi Industri (BALISTAN) Bandar Lampung, Provinsi Lampung. Setelah melalui prosedur kerja pada didapatkan hasil uji kandungan gas karbonmonoksida dan karbondioksida tanpa material yang terdapat pada Tabel 2.

Tabel 2. Uji kandungan gas CO dan CO₂ tanpa material

No	Uji ke-	gas CO(%)	gas CO ₂ (%)
1	1	3.56	2.2
2	2	3.61	2
3	3	2.97	2.4
4	4	3.78	2
5	5	3.72	2.1
	Total	17.64	10.7
	Rata rata	3.528	2.14

Tabel 3. Uji kandungan gas karbonmonoksida dan karbondioksida menggunakan material Si/Al 10

No	Uji ke-	gas CO(%)	gas CO ₂ (%)
1	1	3.51	2
2	2	3.59	1.9
3	3	3.47	2.1
4	4	3.43	2
5	5	3.54	1.8
	total	17.54	9.8
	rata rata	3.508	1.96

Tabel 4. Uji kandungan gas karbonmonoksida dan karbondioksida menggunakan Si/Al 8

No	Uji ke-	gas CO(%)	gas CO ₂ (%)
1	1	3.51	2
2	2	3.43	2
3	3	3.47	1.8
4	4	3.41	1.9
5	5	3.45	2
	total	17.27	9.7
	rata rata	3.454	1.94

Tabel 5. Uji kandungan gas karbonmonoksida dan karbondioksida menggunakan Si/Al 6

No	Uji ke-	gas CO(%)	gas CO ₂ (%)
1	1	3.51	2
2	2	3.32	1.9
3	3	3.41	1.8
4	4	3.46	1.8
5	5	3.35	1.7
	total	17.05	9.2
	rata rata	3.41	1.84

Dari Tabel 2 – 5 menunjukkan bahwa jumlah gas yang terlihat pada alat H.G 520 tidak menentu/berubah ubah. Hal ini disebabkan karena alat dalam kondisi kurang baik, oleh karena itu dilakukan uji sebanyak 5 kali per tiap sampel dan kemudian dirata ratakan. Dari Tabel 3 menunjukkan bahwa jumlah gas CO dan CO₂ yang terlihat dialat H.G .520 lebih sedikit/mengalami pengurangan dibandingkan dengan Tabel 2. Hal disebabkan oleh adanya material yang mampu mengadsorpsi kedua gas tersebut. Material yang dimaksud adalah material yang terdapat pada tabung adsorben. Tabel 3 juga menunjukkan bahwa jumlah gas yang teradsorpsi pada tiap tiap sampel (Si/Al 10,8,6) berbeda beda.

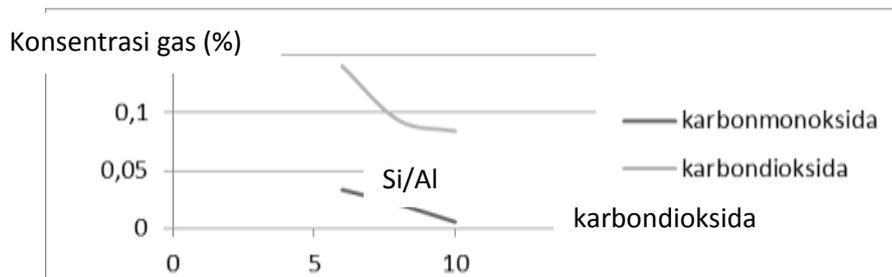
Jumlah gas yang terserap paling banyak adalah material dengan Si/Al 6 kemudian diikuti Si/Al 8 dan jumlah gas yang terserap paling sedikit adalah material dengan Si/Al 10. Hal ini menunjukkan bahwa material dengan Si/Al 6 paling baik dibandingkan kedua material lainnya untuk mengadsorpsi gas CO dan CO₂. Hal ini didukung juga oleh karakteristik XRD sebelumnya yang menyatakan bahwa material dengan rasio Si/Al 6 lebih baik dibandingkan dengan rasio 8 dan 10.

Dari keempat uji dihasilkan persen adsorpsi dengan rumus (Apria dkk, 2013) :

$$\% \text{ Adsorpsi} = \frac{\text{konsentrasi tanpa adsorben} - \text{konsentrasi dengan adsorben}}{\text{konsentrasi tanpa adsorben}} \times 100\%$$

Tabel 6. jumlah gas yang teradsorpsi tiap sampel

No	Si/Al	CO	CO ₂
1	10	0.005668934	0.08411215
2	8	0.020975057	0.093457944
3	6	0.033446712	0.140186916



Gambar 5. Grafik jumlah gas yang teradsorpsi tiap sampel

Gambar 5 menunjukkan perbandingan jumlah gas CO dan CO₂ yang teradsorpsi pada tiap tiap material. Dari gambar terlihat bahwa jumlah gas karbon dioksida lebih banyak teradsorpsi dibandingkan gas karbonmonoksida. Hal ini disebabkan oleh gas karbondioksida bersifat hidrofobik/ non polar. Menurut Qingdong Qin pada tahun 2007, material yang bersifat hidrofobik mampu menyerap senyawa gas yang non polar. Proses adsorpsi terjadi karena adanya interaksi hidrofobik pada permukaan padatan adsorben.

Gambar 5 juga menunjukkan bahwa jumlah gas karbon dioksida dan karbonmonoksida yang teradsorpsi cenderung menurun ketika Si/Al semakin tinggi. Hal ini tidak sesuai dengan literatur yang mengatakan bahwa material MCM-41 yang memiliki rasio Si/Al tinggi maka material akan bersifat hidrofobik karena kandungan Si tinggi, sebaliknya jika Si/Al rendah maka material bersifat hidrofilik. Dari hasil karakteristik XRD sebelumnya mengindikasikan bahwa material yang terbentuk bukanlah MCM-41 yang diinginkan tetapi material ini mampu mengadsorb gas karbonmonoksida dan karbondioksida.

SIMPULAN DAN SARAN

Simpulan

Dari hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa sampel material yang terbentuk bukan merupakan material MCM-41 yang didasari pada hasil karakterisasi untuk semua variasi rasio Si/Al. Berdasarkan dari hasil karakterisasi dan juga uji kerja aplikasi untuk adsorpsi limbah gas karbonmonoksida dan karbondioksida, material dengan rasio Si/Al 6 merupakan material yang paling baik dibandingkan material dengan rasio Si/Al 8 dan rasio Si/Al 10. Material dengan rasio Si/Al 6 memiliki *surface area* 0.994 m²/g, diameter pori 34.375 Å, dengan total volume pori 0.008 cc/g. Hal ini mengindikasikan adanya material mesopori namun tidak sesuai dengan karakteristik material MCM-41.

Saran

Material MCM-41 tidak terbentuk, sehingga perlu dilakukan penelitian ulang mengenai aplikasi material MCM-41 untuk limbah gas dengan rasio Si/Al yang lebih tinggi.

DAFTAR PUSTAKA

- Fatakh I. 2008. Media Edukasi Untuk Semua:Batubara. Dilihat 6 Februari 2016. <www.Beritalptek.com>.
- Londar E, Fansuri H, dan Widiastuti N. 2009. Pengaruh karbon terhadap pembentukan zeolit dari abu dasar dengan metode Hidrotermal langsung. Laboratorium Anorganik FMIPA Institut Teknologi Sepuluh November. Surabaya.
- Misran H, Singh R, Beguma S, Yarmob MA. 2007. Processing of mesoporous silica materials (MCM-41) from coal fly ash". Journal of Materials Processing Technology 186: 8–13.
- Molina A dan Poole C. 2004. A comparative study using two methods to produce zeolites from fly ash. Mineral Engineering 17: 167-173.
- Qingdong Q, Ma Jun, and Lin Ke. 2007. Adsorption of nitrobenzene from aqueous solution by MCM-41. J. Colloid Interface Sci. 315:80–86.
- Rahayu S .2008. Kimia Industri Jilid 3 untuk SMK. Direktorat Jenderal Manajemen Pendidikan dasar dan Menengah Depdiknas. Jakarta.