

**SINTESIS ZEOLIT NaX DARI KAOLIN BLITAR DENGAN ALKALI
FUSI MENGGUNAKAN METODE HIDROTHERMAL DAN SONIKASI
VARIASI WAKTU KRISTALISASI**

SKRIPSI

Oleh:
AMINATUS ARIFAH
NIM. 14630028



**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS SAINS DAN TEKNOLOGI
UNIVERSITAS ISLAM NEGERI MAULANA MALIK IBRAHIM
MALANG
2018**

**SINTESIS ZEOLIT NaX DARI KAOLIN BLITAR DENGAN ALKALI
FUSI MENGGUNAKAN METODE HIDROTERMAL DAN SONIKASI
VARIASI WAKTU KRISTALISASI**

SKRIPSI

Oleh:
AMINTUS ARIFAH
NIM. 14630028

Diajukan Kepada:
Fakultas Sains dan Teknologi
Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim Malang
Untuk Memenuhi Salah Satu Persyaratan Dalam
Memperoleh Gelar Sarjana Sains (S.Si)

**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS SAINS DAN TEKNOLOGI
UNIVERSITAS ISLAM NEGERI MAULANA MALIK IBRAHIM
MALANG
2018**

SINTESIS ZEOLIT NaX DARI KAOLIN BLITAR DENGAN ALKALI FUSI MENGGUNAKAN METODE HIDROTERMAL DAN SONIKASI VARIASI WAKTU KRISTALISASI

SKRIPSI

Oleh:
AMINTUS ARIFAH
NIM. 14630028

Telah Diperiksa dan Disetujui untuk Diuji:
Tanggal: 10 September 2018

Pembimbing I



Susi Nurul Khalifah, M.Si
NIDT. 19851020 20180201 2 240

Pembimbing II



Umayatus Svarifah, M.A
NIP. 19820925 200901 2 005

Mengetahui,
Ketua Jurusan Kimia




Elok Kamilah Hayati, M. Si
NIP. 19790620 200604 2 002

SINTESIS ZEOLIT NaX DARI KAOLIN BLITAR DENGAN ALKALI FUSI MENGGUNAKAN METODE HIDROTHERMAL DAN SONIKASI VARIASI WAKTU KRISTALISASI

SKRIPSI

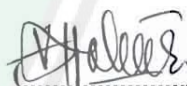
Oleh:
AMINTUS ARIFAH
NIM. 14630028

Telah Dipertahankan di Depan Dewan Penguji Skripsi
Dan Dinyatakan Diterima Sebagai Salah Satu Persyaratan
Untuk Memperoleh Gelar Sarjana Sains (S.Si)
Tanggal: 10 September 2018

Penguji Utama : Diana Candra Dewi, M.Si
NIP. 19770720 200312 2 001



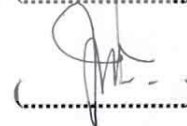
Ketua Penguji : Nur Aini, M.Si
NIDT. 19840608 20160801 2 070



Sekretaris Penguji : Susi Nurul Khalifah, M.Si
NIDT. 19851020 20180201 2 240



Anggota Penguji : Umayatus Syarifah, M.A.
NIP. 19820925 200901 2 005



Mengetahui,
Ketua Jurusan Kimia




Elok Kantiyah Hayati, M. Si
NIP. 19790620 200604 2 002

PERNYATAAN KEASLIAN TULISAN

Saya yang bertanda tangan dibawah ini:

Nama : Aminatus Arifah

NIM : 14630028

Jurusan : Kimia

Fakultas : Sains dan Teknologi

Judul Penelitian : Sintesis zeolit NaX dari kaolin Blitar dengan alkali fusi menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi variasi waktu kristalisasi

Menyatakan dengan sebenarnya bahwa skripsi yang saya tulis ini adaah benar-benar hasil karya saya sendiri, bukan merupakan pengambil alihan data, tulisan atau pikiran orang lain yang saya akui sebagai tulisan atau pikiran saya sendiri, kecuali dengan mencantumkan sumber cuplikan pada daftar pustaka. Apabila dikemudian hari terbukti atau dapat dibuktikan skripsi ini hasil jiplakan maka saya bersedia menerima sanksi perbuatan tersebut.

Yang membuat pernyataan
Malang, 26 September 2018



Aminatus Arifah

NIM. 14630028

HALAMAN PERSEMBAHAN

Alhamdulillah, dengan penuh rasa syukur saya ucapkan pada Allah SWT, Tuhan semesta alam atas ridha dan nikmat-Nya yang tak terhingga, dengan berkat ridha-Mu pula kami bisa belajar menuntut ilmu, dan dengan itu kami semakin menyadari akan kebesaran dan keagungan Mu. Shalawat serta salam terhaturkan kepada baginda Rasulullah Muhammad saw., atas segala kasih sayang dan perjuangan untuk membuka, menunjukkan jalan keselamatan bagi kami ummat-Nya. Kiranya berkenan sebuah karya tulis ini saya persembahkan kepada :

Bapak Suwardi dan Ibu Partini, orang tuaku tercinta yang selalu mendukung dan memberi kasih sayang yang luar biasa, yang merawat dan membesarkan dengan cinta, mendidik, menasehati dengan kasih sayang yang tiada terkira.

Kakakku tercinta, Mohammad Amrul Mustofa dan Istrinya Dewi Khujatul Infaq yang turut serta memberi dukungan dan doanya, serta adikku Sinta Nur Hidayah yang selalu menyemangati dan menghiburku dikala penat.

Bapak dan Ibu dosen terutama bu Susi Nurul Khalifah dan bu Nur Aini yang penuh kesabaran mengajar, membimbing dan membagikan ilmu pengetahuan yang mereka miliki, semoga Allah membalas segala yang mereka berikan.

Teman-teman satu perjuangan, Awwali Maf'ulah Hasanah, Lisa Fitriana, Saifuddin Bachtiar dan Dzul Hilmi Al Mahi yang telah banyak memberi semangat dan membantu satu sama lain.

Seluruh teman-temanku, Galih Putri Utami, Farida Khasanah, Ririn Subandiyah Hariyati, dan Qoyim Fi'liyiyin yang selalu mendukung proses ini, semoga Allah memberikan keberkahan atas usaha yang kita lakukan dalam menuntut ilmu selama ini, semoga semua cita-cita dan harapan kita bisa tercapai, sukses selalu untuk kita semua.

KATA PENGANTAR

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ

Puji syukur bagi Allah yang maha pengasih lagi maha penyayang, atas segala nikmat dan karuniaNya penulis dapat menyelesaikan skripsi yang berjudul **“Sintesis Zeolit Na-Y Dari Kaolin Blitar Dengan Alkali Fusi Menggunakan Metode Hidrotermal Dan Sonikasi Variasi Waktu Kristalisasi”** dengan sebaik mungkin. Shalawat serta salam selalu penulis haturkan pada Nabi Muhammad SAW, yang menjadi suri tauladan bagi kita semua.

Penulis menyadari bahwa penyusunan skripsi ini tidak akan terwujud tanpa adanya bantuan dan dorongan dari berbagai pihak. Oleh karena itu penulis menyampaikan ucapan terima kasih kepada:

1. Ayah dan Ibu tercinta. Terimakasih atas segala do'a, kepercayaan, cinta kasih yang tiada henti diberikan kepada penulis, dan senantiasa memberikan motivasi yang luar biasa sehingga mampu memberikan motivasi dan semangat yang sangat berarti bagi penulis.
2. Ibu Susi Nurul Khalifah, M.Si, Ibu Nur Aini M.Si, dan Ibu Umayatus S, M.A selaku dosen pembimbing dan konsultan yang telah memberikan banyak arahan, masukan, serta motivasi dalam membimbing penulis untuk dapat menyelesaikan skripsi ini dengan baik.
3. Ibu Diana Candra Dewi, M.Si, selaku dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan dan saran, sehingga skripsi ini bisa menjadi lebih baik.
4. Seluruh dosen Jurusan Kimia yang telah memberikan ilmu yang bermanfaat bagi penulis.
5. Seluruh laboran dan staf administrasi kimia atas segala kontribusinya sehingga skripsi ini dapat terselesaikan.

6. Teman–teman mahasiswa angkatan 2014, terutama teman-teman “*Zeolite Team*” yang telah banyak membantu penulis dan memberikan dukungan dalam menyusun skripsi ini.
7. Kepada semua pihak yang ikut membantu dalam menyelesaikan skripsi ini baik berupa moril maupun materil.

Penulis menyadari bahwa skripsi ini masih jauh dari sempurna. Oleh sebab itu saran dan kritik yang bersifat membangun sangat penulis harapkan demi kesempurnaan skripsi ini. Semoga skripsi ini dapat menjadi sarana pembuka tabir ilmu pengetahuan baru dan bermanfaat bagi kita semua, Amin.

Malang, 30 Agustus 2018

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PERSETUJUAN	ii
HALAMAN PENGESAHAN	iii
HALAMAN PERNYATAAN	iv
HALAMAN PERSEMBAHAN	v
KATA PENGANTAR.....	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR TABEL	x
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR LAMPIRAN	xiii
ABSTRAK	xiv
BAB I PENDAHULUAN	
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	4
1.3 Tujuan	4
1.4 Batasan Masalah.....	4
1.5 Manfaat Penelitian.....	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Kaolin Sebagai Starting Material Sintesis Zeolit NaX	6
2.2 Konversi Kaolin Menjadi Metakaolin Metode Alkali Fusi.....	8
2.3 Karakteristik Zeolit NaX	11
2.4 Sintesis Zeolit NaX Metode Hidrotermal Dan Sonikasi	14
BAB III METODOLOGI	
3.1 Pelaksanaan Penelitian	20
3.2 Alat dan Bahan	20
3.2.1 Alat	20
3.2.2 Bahan.....	20
3.3 Rancangan Penelitian	20
3.4 Tahapan Penelitian	21
3.5 Cara Kerja.....	21
3.5.1 Preparasi Sampel Kaolin	21
3.5.2 Konversi Kaolin Menjadi Metakaolin	22
3.5.3 Sintesis Zeolit NaX Metode Hidrotermal	22
3.5.4 Sintesis Zeolit NaX Metode Sonikasi	22
3.6 Karakterisasi Material Sintesis.....	23
3.6.1 Karakterisasi Kaolin Menggunakan <i>X-Ray Fluoresence</i> (XRF).....	23
3.6.2 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan Teknik Difraksi Sinar-X (XRD)	23
3.6.3 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin dan Zeolit NaX Menggunakan <i>Fourier Transform Infrared Spectroscopy</i> (FT- IR)	23
3.6.3 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan <i>Scanning Electron Microscopy</i> (SEM)	23

3.7 Analisis Data	24
3.7.1 Analisis Data hasil karakterisasi menggunakan <i>X-Ray Fluoresence (XRF)</i>	24
3.7.2 Analisis Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan <i>X-Ray Diffraction (XRD)</i>	24
3.7.3 Analisis Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin dan Zeolit NaX Menggunakan <i>Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR)</i>	24
3.7.4 Analisa Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan <i>Scanning Electron Microscopy (SEM)</i>	25
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	
4.1 Preparasi kaolin	26
4.2 Perubahan Kaolin Menjadi Metakaolin.....	28
4.3 Sintesis Zeolit NaX dari Sodium Silikat dengan Metode Hidrotermal dan Sonikasi	33
BAB V HASIL DAN PEMBAHASAN	
5.1 Kesimpulan.....	46
5.2 Saran	46
DAFTAR PUSTAKA	47
LAMPIRAN	50

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Kadar unsur dalam kaolin Blitar	7
Tabel 4.1 Kandungan mineral kaolin	26
Tabel 4.2 Interpretasi spektra FTIR kaolin dan metakaolin.....	32
Tabel 4.3 Ukuran kristal zeolit.....	39
Tabel 4.4 Interpretasi hasil FTIR zeolit NaX dengan standar.....	41



DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Struktur Kaolin.....	6
Gambar 2.2 Difraktogram Kaolin alam Blitar	7
Gambar 2.3 Difraktogram kaolin menjadi metakaolin metode konvensional, kaolin (A), kaolin terpurifikasi (B), dan metakaolin (C)	9
Gambar 2.4 Konversi Kaolin Menjadi Metakaolin menggunakan metode alkali fusi rasio berat NaOH/Kaolin 1 (a), 1,5 (b) dan 2 (c).....	10
Gambar 2.5 Analisis SEM kaolin (a) metakaolin (b).....	11
Gambar 2.6 Difraktogram zeolit NaX.....	14
Gambar 2.7 Mekanisme sintesis zeolit menggunakan metode hidrotermal.....	15
Gambar 2.8 Hasil analisa XRD metakaolin (a), kristalisasi 1 jam (b), 4 jam (c), 6 jam (d), 8 jam (e), 12 jam (f), 24 jam (f)	16
Gambar 2.9 Analisa menggunakan FTIR pada kaolin (a), metakaolin (b) dan zeolit NaX (c)	17
Gambar 2.10 Analisa zeolit NaX menggunakan SEM.....	18
Gambar 4.1 Difraktogram (a) standar kuarsa, (b) standar sodium silikat, (c) std kaolin (d) kaolin alam, (e) hasil proses alkali fusi.....	29
Gambar 4.2 Spektra inframerah (a) standar kuarsa, (b) kaolin, dan (c) hasil proses alkali fusi	30
Gambar 4.3 Morfologi SEM kaolin alam pada perbesaran (a) 15000x, (b) 20.000x dan metakaolin pada perbesaran (c) 15000x, (d) 25.000x.....	33
Gambar 4.4 Difraktogram sintesis zeolit metode hidrotermal (100°C) (a) standar sodalit (b) standar NaX, (c) standar NaY (d) zeolite variasi waktu kristalisasi 2 jam, (e) 4 jam, (f) 6 jam, (g) 12 jam, dan (h) 24 jam..	36
Gambar 4.5 Difraktogram sintesis zeolit metode sonikasi (70°C) (a) standar sodalit (b) standar NaX, (c) standar NaY (d) zeolite variasi waktu kristalisasi 2 jam, (d) 4 jam.....	38
Gambar 4.6 Hasil spektra IR (a) kaolin, (b) sodium silikat, zeolit NaX metode hidrotermal variasi waktu kristalisasi (c) 2 jam dan (d) 4 jam, zeolit NaX metode sonikasi variasi waktu sonikasi (e) 2 jam dan (f) 4 jam	39
Gambar 4.7 Hasil morfologi SEM Zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal variasi waktu kristalisi 2 jam (a, b, c, dan d) dan variasi waktu 4 jam (e, f, g dan h).....	43
Gambar 4.8 Hasil morfologi SEM Zeolit NaX hasil sintesis metode sonikasi variasi waktu sonikasi 2 jam (a, b, c, dan d) dan variasi waktu 4 jam (e, f, g dan h).....	44
Gambar L.7.1 Spektrum inframerah kaolin alam Blitar	67
Gambar L.7.2 Spektrum inframerah NaOH/kaolin rasio 2 (600 °C).....	67
Gambar L.7.3 Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 2 jam.....	9
Gambar L.7.4 Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam.....	10
Gambar L.7.3 Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam (b)	11

Gambar L.7.5 Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 4 jam.....	14
Gambar L.8.1 Hasil SEM kaolin alam Blitar dengan perbesaran (a) 10.000x dan (b) 15.000x.....	15
Gambar L.8.2 Hasil SEM metakaolin dengan perbesaran (c) 15.000x dan (d) 25.000x	16
Gambar L.8.3 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x	17
Gambar L.8.4 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x	18
Gambar L.8.5 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 2 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x	16
Gambar L.8.6 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x	17



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1 Diagram Alir.....	49
Lampiran 2 Perhitungan.....	51
Lampiran 3 Pembuatan larutan	54
Lampiran 4 Data Karakterisasi XRF Kaolin.....	55
Lampiran 5 Data Karakterisasi XRD	56
Lampiran 1 Data Standar XRD Zeolit	65
Lampiran 2 Data Spektra Inframerah Perhitungan	67
Lampiran 3 Data Karakterisasi SEM	70



ABSTRAK

Arifah, Aminatus. 2018. **Sintesis Zeolit Na-X Dari Kaolin Blitar Dengan Alkali Fusi Menggunakan Metode Hidrotermal Dan Sonikasi Variasi Waktu Kristalisasi**. Skripsi. Jurusan Kimia Fakultas Sains dan Teknologi Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim Malang. Pembimbing I: Susi Nurul Khalifah, M.Si; Pembimbing II: Umayatus Syarifah, M.A.; Konsultan: Nur Aini, M.Si.

Kata kunci :Kaolin, Metakaolin, Metode Hidrotermal, Metode Sonikasi, Zeolit NaX

Penggunaan kaolin Blitar sebagai sumber silika dan alumina untuk sintesis zeolit NaX telah dilakukan. Kaolin diubah terlebih dahulu menjadi metakaolin melalui proses alkali fusi. Proses alkali fusi dilakukan dengan rasio berat NaOH/kaolin 2 :1. Sintesis zeolit NaX dilakukan dengan variasi metode hidrotermal dan metode sonikasi serta variasi waktu 2 jam dan 4 jam pada kedua metode. Sintesis zeolit melalui proses hidrotermal menggunakan suhu 100 °C sedangkan sintesis zeolit metode sonikasi menggunakan suhu 70 °C. Karakteristik kaolin, metakaolin dan zeolit NaX hasil sintesis telah diketahui melalui analisis dengan difraksi sinar-X (XRD) untuk mengetahui jenis zeolit, spektroskopi inframerah (FTIR) untuk mengetahui gugus fungsi zeolit yang terbentuk, dan SEM untuk mengetahui morfologi.

Kaolin alam Blitar mengandung kaolin serta pengotor kuarsa yang tinggi, setelah diubah menjadi metakaolin terbentuk sodium silikat serta sedikit metakaolin. Zeolit yang dihasilkan dari metode hidrotermal terdiri dari zeolit NaX pada waktu 2 jam dan campuran zeolit NaX serta sodalit pada waktu kristalisasi 4 jam. Zeolit yang dihasilkan dari metode sonikasi berupa zeolit NaX baik pada waktu kristalisasi 2 jam maupun 4 jam. Perubahan kaolin menjadi metakaolin pada spektra FTIR ditandai dengan menghilangnya serapan pada daerah 1037, 912, dan 795 cm^{-1} pada spektrum metakaolin. Spektra zeolit hasil sintesis memiliki serapan pada daerah 984, 741, dan 560 cm^{-1} yang merupakan puncak khas zeolit faujasit. Morfologi kaolin berupa lempengan yang berlapis-lapis, sementara metakaolin tidak beraturan/*amorf*, sedangkan morfologi zeolit hasil sintesis berubah kristal kubus dengan ukuran kristal yang semakin besar dengan meningkatnya waktu kristalisasi.

ABSTRACT

Arifah, Aminatus. 2018. **Synthesis Of NaX Zeolite From Blitar Kaolin With Alkali Fusion Using Hydrothermal And Sonication Method With Variation Of Crystalization Time**. Thesis. Department of Chemistry Faculty of Science and Technology State Islamic University Maulana Malik Ibrahim Malang. Supervisor I: Susi Nurul Khalifah, M.Si; Supervisor II: Umayatus Syarifah, M.A; Consultant: Nur Aini, M.Si.

Keywords: Kaolin, Metakaolin, Hydrothermal Method, Sonication Method, NaX Zeolite

The use of Blitar Kaolin as a silica and alumina source for synthesis of NaX zeolite has been performed. Kaolin was converted to metakaolin using alkali fusion method. Alkali fusion method was carried out using weight ratio NaOH/kaolin 2:1. NaX zeolite was synthesized using hydrothermal and sonication method with time variation 2 hours and 4 hours of both method. Synthesis through hydrothermal process using temperature 100 °C and sonication method using temperature 70 °C. The characteristics of kaolin, metakaolin and NaX zeolites were known by X-ray Diffraction (XRD) analysis to determine the type of zeolite, Fourier Transform Infrared (FTIR) to determine the functional group of zeolite, and Scanning Electron Microscope (SEM) to determine its morphology.

Blitar natural kaolin contain kaolin and high contaminant of quartz, after converted to metakaolin was formed sodium silicate and few metakolin. Zeolite that formed using hydrothermal method was NaX zeolite on 2 hours crystalization and mixture of NaX zeolite and sodalite on 4 hours crystalization. Zeolite that formed using sonication method was NaX zeolite either at 2 hours or 4 hours crystalization time. FTIR spectra indicate changes in the kaolin into metakaolin is characterized by the disappearance of absorption at area 1037, 912, and 795 cm^{-1} in the spectrum of metakaolin. The synthesized zeolite spectra have absorptions in regions 984, 741, and 560 cm^{-1} which is typical absorption of faujasite zeolite. The morphology of kaolin is a multi-layered plate, while metakaolin is irregular/amorf, the synthesized zeolite morphology is cubic crystal with the size of the larger zeolite crystals increasing with increasing crystallization time.

الملخص

عريفة، آمنة. ٢٠١٨. تخليق NaX الزيوليت من الكاولين مع الاندماج القلوي باستخدام طرق الهيدروحرارية والتباينات صوتية من وقت التبلور. البحث الجامعي. شعبة الكيمياء، كلية العلوم والتكنولوجيا في جامعة الإسلامية الحكومية مولانا مالك إبراهيم مالانج. المشرفة الأولى: سوسي نور خليفة، الماجستير، المشرف الثاني: أمية الشريفة، الماجستير، مستشارة: نور عيني، الماجستير

الكلمات المصاحبة : الكاولين، الميتاكاولين، الطريقة الحرارية المائية، الطريقة الصوتية، الزيوليت NaX

وقد تم البحث على استخدام الكاولين بليتار كمصدر للسيليكا والألومينا لتخليق زيوليت NaX. يتم تحويل الكاولين أولاً إلى الميتاكاولين عن طريق عملية الاندماج القلوي. تتم عملية الانصهار القلوية مع نسبة الوزن من NaOH / الكاولين ٢ : ١. تم إجراء توليف من زيوليت NaX عن طريق تباين الأسلوب الهيدروحراري وطريقة صوتية وتغيير الوقت من ٢ ساعة و ٤ ساعات في كلتا الطريقتين. تخليق الزيوليت من خلال العملية الحرارية المائية باستخدام درجة حرارة ١٠٠ درجة مئوية أثناء توليف طريقة الزيوليت الزيولي باستخدام درجة الحرارة ٧٠ درجة مئوية. تم تحديد خصائص الكاولين والميتاكاولي والزيوليت NaX المركب بواسطة تحليل حيود الأشعة السينية (XRD) لتحديد نوع الزيوليت ، مطيافية الأشعة تحت الحمراء (FTIR) لتحديد مجموعات الزيوليت الوظيفية المشكلة ، و المجهر الإلكتروني المسح (SEM) لتحديد المرفولوجيا. الكاولين الطبيعي بليتار يحتوي على الكاولين الكاولين فضلا عن الشوائب عالية الكوارتز ، بعد تحويلها إلى سيليكات الصوديوم التي تشكلت الميتاكاولين والقليل من الميتاكاولين. يتكون الزيوليت المنتج من الطريقة الحرارية المائية من زيوليت NaX في ساعتين وخليط من زيوليت NaX و سوداليت في ٤ ساعات من التبلور. و يتكون الزيوليت المنتج من طريقة صوتية من الزيوليت NaX في وقت بلورة ساعتين و ٤ ساعات. يتميز تحويل الكاولين للميتاكاولين في أطيف FTIR باختفاء الامتصاص في المناطق ١٠٣٧ و ٩١٢ و ٧٩٥ cm^{-1} في طيف الميتاكاولين. الأطيف الزيوليت توليف لديها امتصاص في المناطق ٩٨٤ ، ٧٤١ ، و ٥٦٠ cm^{-1} والتي هي الذروة النموذجية للزيوليت الفوجاسيت. إن مورفولوجية الكاولين عبارة عن صفيحة متعددة الطبقات ، في حين أن الميتالون غير منتظم / غير متبلور ، في حين أن مورفولوجيا الزيوليت المركب يغير البلورات المكعبة عن طريق زيادة حجم البلورات مع زيادة زمن التبلور.

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Kaolin ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$) adalah mineral lempung yang umumnya mengandung alumina dan silika sebagai penyusun utamanya. Struktur kaolin berupa kombinasi lapisan silika tetrahedral (SiO_4)⁴⁻ yang berikatan dengan oksigen (siloksan) dan lapisan alumina oktahedral (AlO_4)⁵⁻ yang berikatan dengan gugus hidroksil (aluminol) (Wypych, 2004). Jumlah kaolin melimpah di alam salah satunya di Indonesia yang mencapai 1.070.015.564 ton (Neraca Sumber Daya Mineral, 2016) sehingga perlu ditingkatkan pemanfaatan dan nilai ekonomisnya. Salah satu pemanfaatan kaolin adalah sebagai material sintesis zeolit berdasarkan rasio Si/Al kaolin yang tinggi (Kovo, dkk. 2009).

Allah berfirman dalam al-Quran surat al-Jatsiyah (45) : 13.

وَسَخَّرَ لَكُمْ مَّا فِي السَّمَاوَاتِ وَمَا فِي الْأَرْضِ جَمِيعًا مِنْهُ إِنَّ فِي ذَلِكَ لَآيَاتٍ لِّقَوْمٍ يَتَفَكَّرُونَ (١٣)

Artinya : “Dan Dia telah menundukkan utukmu apa yang di langit dan apa yang di bumi semuanya, (sebagai rahmat) daripada-Nya. Sesungguhnya pada yang demikian itu benar-benar terdapat tanda-tanda (kekuasaan Allah) bagi kaum yang berfikir.”(QS. Al-Jatsiyah : 13).

Menurut tafsir Ibnu Katsir kata *وَسَخَّرَ لَكُمْ* yang berarti menundukkan mempunyai makna bahwa Allah SWT telah menciptakan segala yang ada di bumi dan di langit tunduk sehingga dapat dimanfaatkan untuk memenuhi kebutuhan manusia. Selanjutnya kata *جَمِيعًا مِنْهُ* menunjukkan bahwa penundukan tersebut merupakan rahmat, kata tersebut merupakan salah satu dari asma Allah SWT yang menyiratkan bahwa Allah SWT adalah sebaik-baik pemberi rahmat dan tidak ada yang mampu menandingi-Nya (Katsir, 2010). Kata *وَمَا فِي الْأَرْضِ* menurut tafsir al

Misbah meliputi tanaman, susu, tanah yang subur, air, api, udara, dan batuan (Shihab, 2009). Salah satu jenis batuan adalah kaolin, kaolin Allah ciptakan dengan kadar alumina dan silika yang tinggi sehingga dapat dimanfaatkan sebagai material sintesis zeolit.

Zeolit adalah mineral aluminosilikat hidrat, mikropori dan kristalin yang mengandung logam alkali atau logam alkali tanah. Struktur zeolit merupakan campuran dari silika (SiO_4)⁴⁻ dan alumina (AlO_4)⁵⁻ tetrahedral yang berikatan pada sudutnya membentuk struktur terbuka (Rios, dkk. 2009). Salah satu jenis zeolit yang banyak digunakan adalah zeolit Na-X yang merupakan zeolit faujasit. Zeolite NaX termasuk salah zeolit yang memiliki banyak kegunaan, terutama sebagai kation *exchange*, absorben, *molekular sieve*, katalis, juga diaplikasikan pada pemurnian dan pemisahan gas maupun komponen organik (Wajima, dkk. 2008).

Sintesis zeolit Na-X dari kaolin dapat dilakukan dengan dua tahap, yaitu tahap pertama konversi kaolin menjadi metakaolin dan tahap kedua yaitu konversi metakaolin menjadi zeolit Na-X. Konversi kaolin menjadi zeolit secara langsung akan menghasilkan zeolit dengan banyak pengotor seperti hidroksisodalit dan kuarsa sehingga perlu adanya konversi menjadi metakaolin (Rios, dkk. 2009). Metakaolin merupakan material amorf yang sangat reaktif, dan merupakan fase metastabil sehingga dapat secara langsung diubah menjadi zeolit (Kovo, dkk. 2009).

Konversi kaolin menjadi metakaolin dilaporkan menggunakan metode konvensional atau dengan alkali fusi (Ayele, dkk. 2016, Hartati, dkk. 2017). Metode konvensional dilakukan dengan kalsinasi (pemanasan pada 700-900 °C) yang menyebabkan terjadinya pelepasan air sehingga membentuk material amorf

(Wang, dkk. 2014). Sedangkan metode alkali fusi dilakukan dengan kalsinasi serta penambahan basa seperti NaOH untuk melarutkan pengotor pada kaolin (Wang dan Lin, 2009). Konversi kaolin menjadi metakaolin dengan metode konvensional dilaporkan menggunakan suhu 800°C selama 3 jam (Wang, dkk. 2014) dan 650°C selama 2 jam (Kim, dkk. 2012) yang menghasilkan metakaolin dengan pengotor berupa kuarsa. Konversi lain dari Kaolin Blitar telah dilaporkan menggunakan suhu 630-800°C selama 3-24 jam yang juga menghasilkan metakaolin dengan pengotor berupa kuarsa yang tinggi dan masih terdapat puncak kaolin (Cahyawati, 2017).

Konversi kaolin menjadi metakaolin menggunakan metode alkali fusi dengan suhu 200°C selama 4 jam dilaporkan menghasilkan metakaolin fasa amorf (Ma, dkk 2014), sedangkan suhu 600°C selama 1 jam juga telah dilaporkan menghasilkan metakaolin fasa amorf (Rios, dkk. 2012,) ataupun dengan pengotor seperti kuarsa (Moneim dan Ahmed, 2015) dan gipsit (Hartati, dkk. 2017). Penelitian yang telah dilaporkan tersebut menunjukkan konversi kaolin menjadi metakaolin menggunakan alkali fusi menghasilkan metakaolin yang lebih murni daripada metode konvensional, sehingga diharapkan dapat menghasilkan zeolit NaX yang lebih murni.

Sintesis zeolit Na-X umumnya dilakukan dengan metode hidrotermal dalam suasana basa (Chandrasekar dan Pramada (1999), Wajima, dkk. (2008), Thuadaj dan Nuntinya, (2012), Ma, dkk. (2014), Ngoc, dkk. (2013), Zhang, dkk. (2015), Ghrib, dkk. (2016)). Sintesis zeolit Na-X dengan metode hidrotermal dilaporkan menggunakan suhu 90°C selama 8 jam menghasilkan zeolit Na-X murni dan selama 12 jam yang menghasilkan campuran zeolit Na-X dan sodalit (Ma, dkk.

2014). Penelitian lain menggunakan suhu 100°C selama 6 jam menghasilkan zeolit Na-X murni sedangkan selama 12 jam dan 24 jam menghasilkan zeolit Na-X dengan pengotor zeolit P (Bondareka, dkk. 2002). Hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa suhu dan waktu kristalisasi mempengaruhi hasil sintesis zeolit Na-X.

Selain metode hidrotermal, zeolit juga dapat disintesis dengan metode sonikasi. Metode sonikasi memanfaatkan radiasi ultrasonik yang menyebabkan kavitasi dalam media cair sehingga meningkatkan stimulasi reaktivitas spesies kimia dan reaksi berlangsung lebih cepat. Penelitian tentang sintesis zeolit Na-X menggunakan metode sonikasi hanya sedikit dilaporkan tetapi sintesis zeolit A dilaporkan telah berhasil dilakukan oleh Kim, dkk (2010). Zeolit A dilaporkan telah disintesis menggunakan suhu 75°C selama 2 jam radiasi menghasilkan zeolit A murni dan selama 4 jam radiasi menghasilkan campuran zeolit A dan hidroksisodalit (Kim, dkk. 2010). Penelitian lain menggunakan *fly ash* sebagai *precursor* dengan suhu 60°C selama 1 jam menghasilkan zeolit Na-X dengan pengotor sodalit dan suhu 45°C menghasilkan zeolit Na-X murni (Belviso, dkk. 2013). Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilaporkan sintesis zeolit NaX dari metakaolin menggunakan metode sonikasi belum pernah dilaporkan sehingga penelitian tersebut perlu dilakukan.

Penelitian ini akan dilakukan dengan menkonversi kaolin alam Blitar menjadi metakaolin menggunakan metode alkali fusi. Metakaolin kemudian digunakan untuk sintesis zeolit Na-X menggunakan metode hidrotermal dan metode sonikasi. Selain perbandingan metode untuk menghasilkan zeolit Na-X murni juga akan dilakukan perbandingan waktu kristalisasi pada setiap metode.

1.2 Rumusan Masalah

Rumusan masalah dari penelitian ini adalah bagaimana hasil karakterisasi Zeolit Na-X dari kaolin dengan alkali fusi menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi variasi lama waktu kristalisasi?

1.3 Tujuan

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui hasil karakterisasi Zeolit Na-X dari kaolin dengan alkali fusi menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi variasi lama waktu kristalisasi.

1.4 Batasan Masalah

Batasan dalam penelitian ini adalah :

1. Kaolin yang digunakan adalah kaolin dari Blitar.
2. Metode yang digunakan adalah hidrotermal, dan sonikasi.
3. Metode hidrotermal menggunakan lama waktu kristalisasi 2 jam dan 4 jam.
4. Metode sonikasi menggunakan lama waktu kristalisasi 2 jam dan 4 jam.

1.5 Manfaat

Manfaat dari penelitian ini adalah :

1. Mengetahui pemanfaatan lain dari lempung jenis kaolin.
2. Mengetahui hasil karakterisasi Zeolit Na-X dari kaolin dengan alkali fusi menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi variasi lama waktu kristalisasi.

BAB II

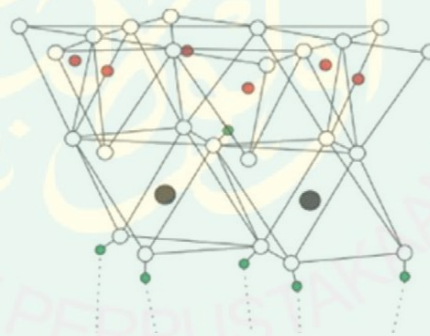
DAFTAR PUSTAKA

2.1 Kaolin Sebagai *Starting Material* Sintesis Zeolit NaX

Kaolin termasuk jenis mineral lempung dengan rumus kimia $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dan memiliki struktur berupa lembaran SiO_4 tetrahedral dan lembaran AlO_5 oktahedral dengan rasio 1 : 1 (Murray, 2000). Kristal kaolin terdiri dari tumpukan lembar alumunium dan lembar silika. Susunan lembaran tetrahedral silika dan oktahedral alumunium dihubungkan oleh atom oksigen pada satu sisi dan hidrogen dari gugus hidroksil pada sisi yang lain, sehingga menghasilkan tumpukan dengan 8 ikatan hidrogen yang kuat (Tan, 1995). Susunan atom pada mineral kaolin diperlihatkan seperti pada Gambar 2.1.

Ket :

- Oksigen
- Hidrogen
- Alumunium
- Silikon



Gambar 2.1 Struktur kaolin (Cheng, dkk. 2012)

Aplikasi kaolin diantaranya untuk industri kertas yang berfungsi meningkatkan kualitas permukaan kertas sehingga lebih lembut dan cerah. Selain itu kaolin juga digunakan sebagai bahan keramik, cat, dan fertilizer (Abdullah, dkk. 2016). Kandungan silika dan alumina yang tinggi juga memungkinkan kaolin

untuk digunakan sebagai material sintesis zeolit. Kaolin Blitar sebagai *starting material*



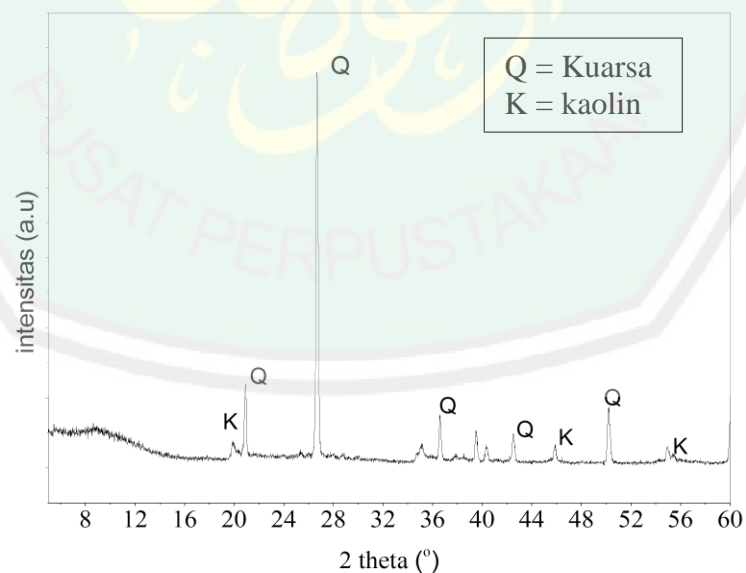
dari sintesis zeolit memiliki kandungan Al sebanyak 12 % dan silika 65,4 % serta sedikit kandungan logam. Hasil tersebut ditunjukkan oleh analisa dengan XRF pada Tabel 2.1 (Darmawan, 2017).

Tabel 2.1 Kadar unsur dalam kaolin Blitar

Unsur	Al	Si	K	Ca	Ti	V	Mn	Fe	Ni	Cu	Eu
Kadar (%)	12	65,4	8	2,66	3,68	0,08	0,22	8,61	0,19	0,12	0,11

(Darmawan, 2017)

Permasalahan utama dalam sintesis zeolit dari kaolin adalah adanya pengotor pada kaolin seperti kuarsa, muskovit, felspar dan mineral lainnya. Hasil analisa kaolin Blitar menggunakan XRD pada Gambar 2.2 menunjukkan bahwa kaolin Blitar memiliki pengotor berupa kuarsa yang tinggi.



Gambar 2.2 Difraktogram kaolin alam Blitar (Cahyawati, 2017)

Sintesis zeolit dari kaolin secara langsung juga menghasilkan pengotor berupa sodalit dan kankrinit mengacu pada konsentrasi Si/Al kaolin Blitar yang tinggi. Selain pengotor, sintesis zeolit secara langsung akan menghasilkan zeolit dengan kristalinitas rendah (Rios, dkk. 2009). Zeolit dengan kristalinitas dan kemurnian yang tinggi dilaporkan telah disintesis dengan cara mengubah kaolin terlebih dahulu menjadi metakaolin (Chandrasekhar dan Pramada, 2004, Kovo, dkk. 2009, Mohammed, dkk. 2013, Ayele, dkk. 2016, Hartati, dkk. 2017, Salahudeen dan Ahmet, 2016.).

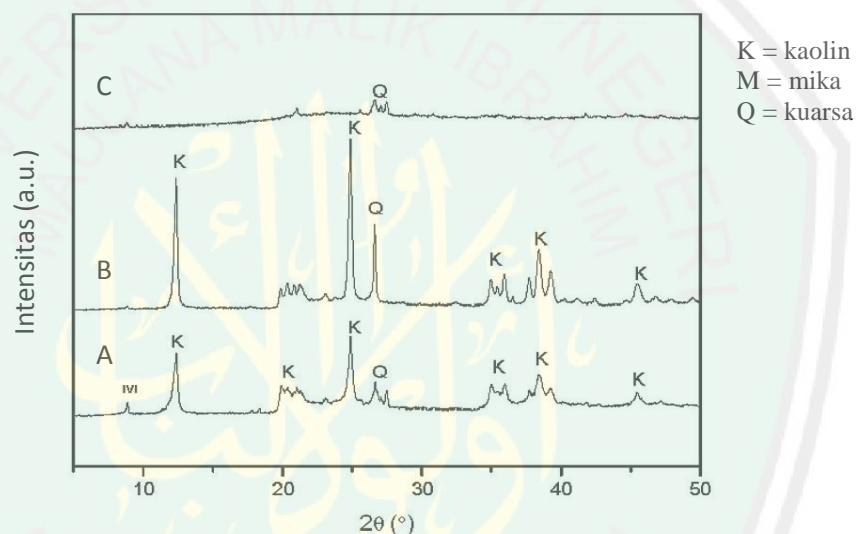
2.2 Konversi Kaolin Menjadi Metakaolin Metode Alkali Fusi

Metakaolin ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_7$) adalah material amorf yang didapat dari material alam seperti kaolin (dehidroksilasi) tetapi sangat reaktif, berupa fase metastabil yang dapat diubah secara langsung menjadi zeolit. Aktivasi termal mineral kaolin antara $600\text{--}900^\circ\text{C}$ menyebabkan adanya dehidroksilasi sehingga merusak sebagian struktur kaolin membentuk sebuah fase metastabil dengan reaktivitas yang tinggi (Ambroise, dkk. 1986).

Metode untuk mengkonversi kaolin menjadi metakaolin terbagi menjadi dua yaitu dengan metode konvensional dan alkali fusi. Metode konvensional dilakukan dengan menggunakan pemanasan (Chandrasekhar dan Pramada, 2004), sedangkan metode alkali fusi yaitu dengan pemanasan dan penambahan NaOH (Hartati, dkk. 2017).

Metode konversi kaolin menjadi metakaolin menggunakan metode konvensional telah dilaporkan menghasilkan metakaolin dengan berbagai pengotor (Kim, dkk. 2012, Wang, dkk. 2014, Darmawan, 2017, Cahyawati, 2017),

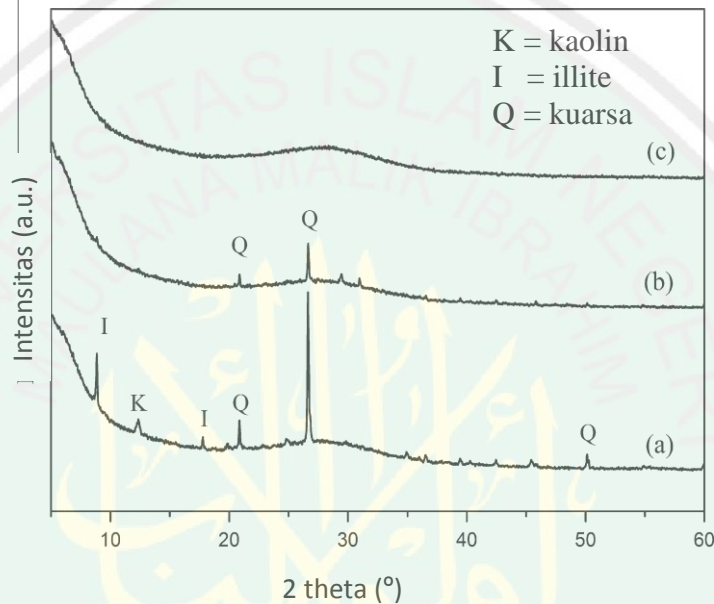
salah satunya sintesis menggunakan suhu 600°C selama 3 jam yang telah dilakukan Ayele, dkk. (2016) dilaporkan menghasilkan metakaolin dengan pengotor berupa kuarsa. Hasil XRD metakaolin menunjukkan bahwa puncak kuarsa tetap muncul pada hasil sintesis seperti pada Gambar 2.3, Kuarsa merupakan material yang memiliki kestabilan termal tinggi sehingga sulit dihilangkan meskipun terdapat dalam jumlah yang kecil pada kaolin.



Gambar 2.3 Difraktogram kaolin menjadi metakaolin metode konvensional, kaolin (A), kaolin terpurifikasi (B), dan metakaolin (C) (Ayele, dkk. 2016).

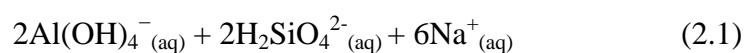
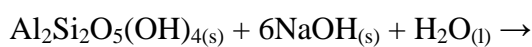
Konversi kaolin Blitar menjadi metakaolin metode alkali fusi telah dilaporkan menggunakan suhu 600°C selama 1 jam dengan rasio NaOH/kaolin 1,2 yang menghasilkan pengotor berupa gipsit (Hartati, dkk. 2017). Sintesis lain dilaporkan oleh Ma, dkk (2014) menggunakan rasio NaOH/kaolin 1, 1,5 dan 2 pada suhu 400°C selama 4 jam yang menghasilkan metakaolin murni pada rasio 2 (Ma, dkk. 2014). Analisa metakaolin menggunakan XRD pada Gambar 2.4 menunjukkan metakaolin yang diperoleh pada rasio 2 lebih murni meskipun raw

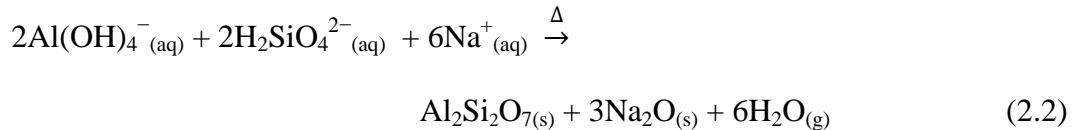
material memiliki banyak pengotor. Berdasarkan penelitian yang telah dilaporkan, metode alkali fusi menghasilkan metakaolin yang lebih murni dibandingkan metode konvensional sehingga penelitian ini akan dilakukan menggunakan metode alkali fusi rasio berat NaOH/ Kaolin 2.



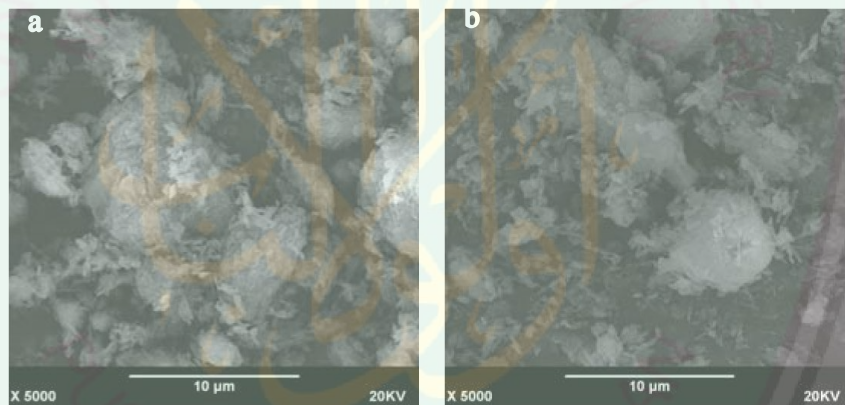
Gambar 2.4 Konversi kaolin menjadi metakaolin menggunakan metode alkali fusi rasio berat NaOH/Kaolin 1 (a), 1,5 (b) dan 2 (c) (Ma, dkk. 2014)

Reaksi konversi kaolin menjadi metakaolin menggunakan metode alkali fusi diuraikan pada persamaan 2.1 dan persamaan 2.2 (Zhou, dkk. (2014)). Berdasarkan persamaan reaksi tersebut penambahan basa pada pemanasan kaolin menyebabkan adanya *dissolusi* kaolin dengan melepaskan Si dan Al. Reaksi juga diikuti dengan pemanasan sehingga terbentuk campuran metakaolin dan natrium oksida.





Analisa menggunakan SEM pada kaolin dan metakaolin ditunjukkan seperti pada Gambar 2.5 yang menunjukkan bahwa konversi kaolin menjadi metakaolin menjadikan kaolin yang awalnya kristalin menjadi fase amorf. Fasa amorf menghasilkan material yang berbentuk tidak beraturan pada SEM. Fasa amorf tersebut menyebabkan metakaolin memiliki reaktifitas yang tinggi sehingga dapat langsung disintesis menjadi zeolit.



Gambar 2.5 Analisis SEM Kaolin (a) metakaolin (b) (Li, dkk. 2010)

2.3 Karakteristik Zeolit NaX

Mineral zeolit merupakan kelompok mineral alumunium silikat terhidrasi dengan rumus empirik :



Struktur kerangka zeolit dibangun oleh $(\text{SiO}_4)^{4-}$ tetrahedral dan $(\text{AlO}_4)^{5-}$ tetrahedral yang terikat melalui jembatan atom-atom oksigen membentuk kerangka tiga dimensi terbuka. Struktur tersebut dibangun oleh alumina yang

membawa muatan negatif, muatan negatif tersebut diseimbangkan oleh kation dari logam alkali atau alkali tanah sehingga struktur stabil (Johnson dan Arshad, 2014).

Menurut Salahudeen, dkk. (2016) zeolit terbagi menjadi 206 jenis dan sekitar 40 jenis zeolit telah diketahui struktur frameworknya. Salah satu jenis zeolit yang umum digunakan adalah zeolit faujasit. Zeolit faujasit $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Si}_{3,3}\text{O}_{10,6}(\text{H}_2\text{O})_7$ adalah tipe zeolit yang memiliki ukuran pori seragam, memiliki luas area yang spesifik dan kestabilan termal tinggi. Pori zeolit faujasit relatif kecil sehingga tidak dapat digunakan untuk molekul yang besar, seperti proses pemurnian limbah organik dan limbah minyak yang berat (Salahudeen, 2016). Zeolit faujasit dibagi menjadi dua yaitu zeolit NaX dan zeolit NaY tergantung pada rasio Si/Al. Zeolit NaX memiliki rasio Si/Al kurang dari 2,5 sedangkan zeolit NaY memiliki rasio Si/Al lebih dari 2,5 sampai 5,8 (Chandrasekar, dkk. 2004). Perbedaan ukuran rasio tersebut telah Allah jelaskan dalam firman-Nya surat Al-Hijr (15): 19 sebagai berikut.

وَالْأَرْضَ مَدَدْنَاهَا وَأَلْقَيْنَا فِيهَا رَوَاسِيَ وَأَنْبَتْنَا فِيهَا مِنْ كُلِّ شَيْءٍ مَّوْزُونٍ (١٩)

Artinya: “Dan Kami telah menghamparkan bumi dan menjadikan padanya gunung-gunung dan Kami tumbuhkan padanya segala sesuatu menurut ukuran.” (QS. Al-Hijr (15) : 19).

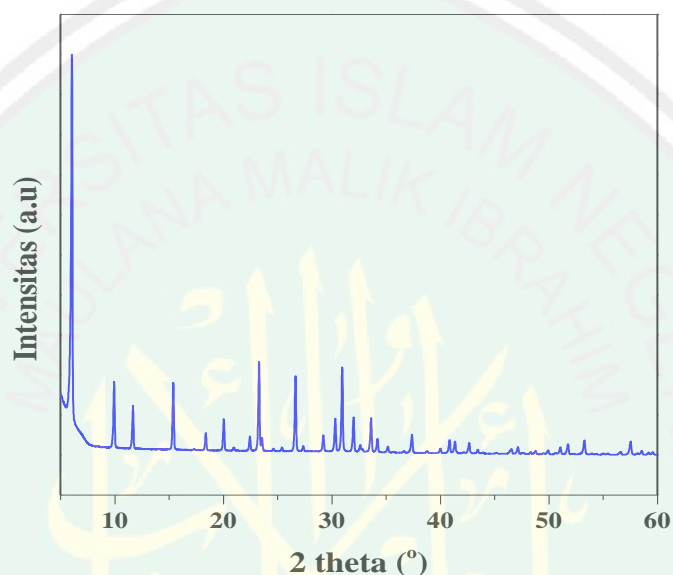
Ayat tersebut menjelaskan bahwa Allah SWT telah menumbuhkan segala sesuatu yang ada di bumi menurut ukuran. Para mufassir bersepakat bahwa kata *mauzun* tersebut mengacu pada pertumbuhan tanaman (Shihab; 2009, Mahalli dan Suyuti; 2012). Sedangkan menurut tafsir Ibnu Katsir kata *mauzun* (ukuran) mempunyai makna ukuran yang telah diketahui. Hal yang sama juga dikatakan

oleh Sa'id ibnu Jubair yang mengatakan bahwa makna kata tersebut adalah segala sesuatu menurut ukuran yang pantas. Sedangkan Ibnu Zaid mengatakan, makna *mauzun* tersebut adalah kadar dan ukuran yang sesuai, dan berkorelasi dengan timbangan yang biasa dipakai di perdagangan (Katsir, 2010). Kata *mauzun* tersebut juga sesuai dengan pembentukan zeolit yang setiap jenisnya memiliki ukuran yang berbeda meskipun memiliki kandungan yang sama yaitu silika dan alumina. Zeolit yang memiliki struktur sama seperti zeolit NaX dan zeolit NaY yang keduanya termasuk golongan faujasit bahkan dapat dibedakan dari kandungan rasio molarnya. Hal ini sesuai dengan firman Allah SWT pada ayat di atas bahwa Allah SWT menumbuhkan segala sesuatu menurut ukuran. Perbedaan ukuran pada zeolit tersebut juga memudahkan manusia untuk menirunya seperti pada sintesis NaX yang menggunakan rasio Si/Al rendah dan sintesis zeolit NaY yang menggunakan rasio Si/Al tinggi.

Zeolite NaX adalah zeolit golongan faujasite (FAU) yang terkenal karena aktivitas katalitik dan struktur berporinya (Salahudeen, dkk. 2016). Zeolit NaX merupakan salah satu struktur faujasit dengan kerangka sodalit yang terikat dengan dua cincin-6 dan menghasilkan struktur dengan 12 cincin pori terbuka yang menyebabkan adanya struktur 3 dimensi dan memiliki rasio Si/Al kurang dari 2,5 (Kovo, dkk. 2009). Zeolite NaX termasuk salah zeolit yang memiliki banyak kegunaan, terutama sebagai kation *exchange*, absorben, *molekular sieve*, katalis, juga diaplikasikan pada pemurnian dan pemisahan gas maupun komponen organik (Wajima, dkk. 2018).

Difraktogram standar analisa zeolit NaX menggunakan XRD ditunjukkan seperti pada Gambar 2.6. Puncak spesifik pada difraktogram zeolit NaX

ditunjukkan pada daerah 2θ dari 15° sampai 35° . Difraktogram tersebut dapat dijadikan acuan untuk penentuan jenis zeolit dan kemurnian zeolit yang telah disintesis dengan membandingkan difraktogram hasil sintesis dengan difraktogram standar dari zeolit.

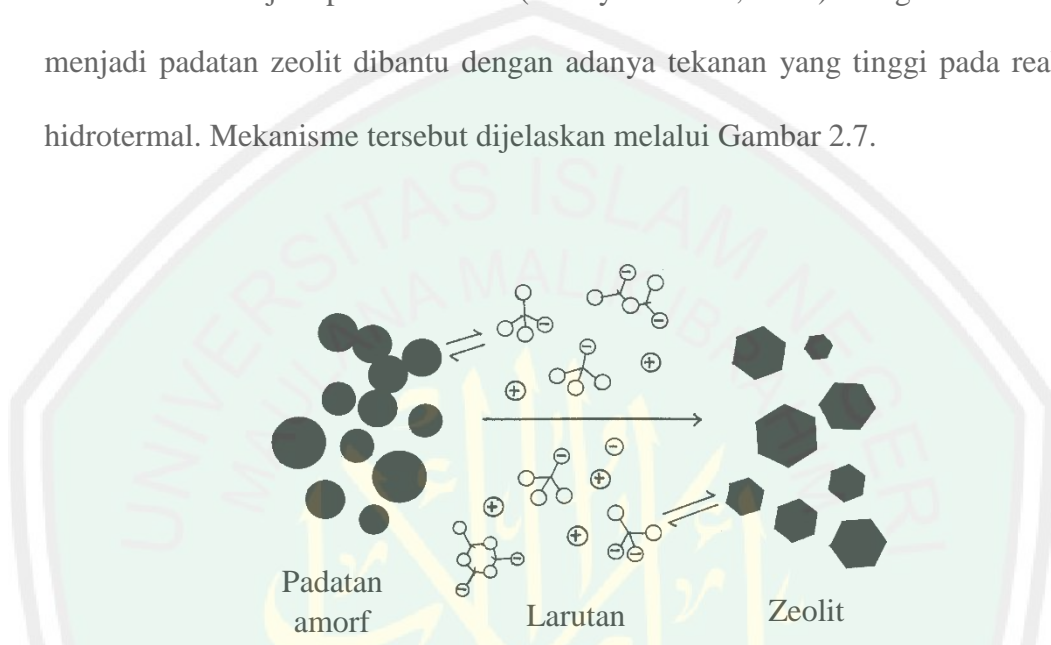


Gambar 2.6 Difraktogram zeolit NaX (IZA, 2010)

2.4 Sintesis Zeolit NaX Metode Hidrotermal dan Sonikasi

Sintesis zeolit NaX dapat dilakukan dengan metode hidrotermal atau metode sonikasi. Metode hidrotermal adalah teknik sintesis pada reaksi heterogen yang dibantu oleh adanya air ataupun *mineralizer* pada kondisi dibawah suhu atau tekanan yang tinggi untuk melarutkan dan mengkristalkan kembali suatu senyawa yang tidak dapat larut pada kondisi biasa. Sintesis menggunakan metode ini biasanya dilakukan pada suhu dibawah 100°C dan tekanan 1 bar (Byrappa dan Yoshimura. 2001).

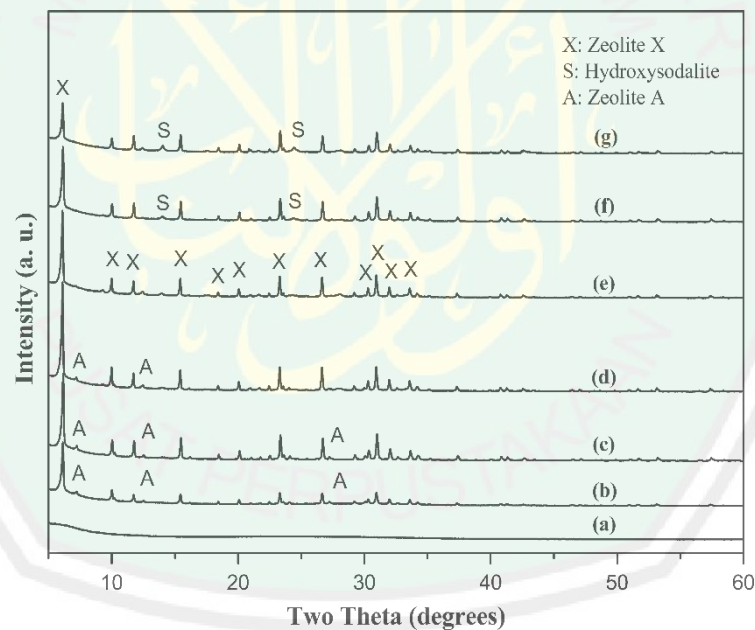
Mekanisme sintesis zeolit metode hidrotermal diawali dengan mengubah material amorf seperti metakaolin menjadi larutan dengan menaikkan temperatur dan pH. Setelah padatan menjadi larutan dan mencapai kesetimbangan, larutan akan diubah menjadi padatan zeolit (Cundy dan Cox, 2005). Perubahan larutan menjadi padatan zeolit dibantu dengan adanya tekanan yang tinggi pada reaktor hidrotermal. Mekanisme tersebut dijelaskan melalui Gambar 2.7.



Gambar 2.7 Mekanisme sintesis zeolit menggunakan metode hidrotermal (Cundy dan Cox, 2005)

Metode sonikasi adalah metode sintesis yang memanfaatkan radiasi ultrasonik sehingga menyebabkan munculnya kavitasi dalam larutan. Interaksi radiasi ultrasonik dengan larutan menyebabkan adanya ekspansi dan kompresi gelombang ultrasonik sehingga menimbulkan kavitasi atau gelembung-gelembung. Gelembung tersebut akan bergetar oleh adanya radiasi ultrasonik dan saling bertumbukan satu sama lain sehingga terjadi pelepasan energi yang menyebabkan tekanan dan suhu sistem meningkat. Peningkatan tekanan dan suhu pada sistem akan mempercepat terjadinya reaksi kimia antara spesies reaktan (Bang dan Suslick, 2010).

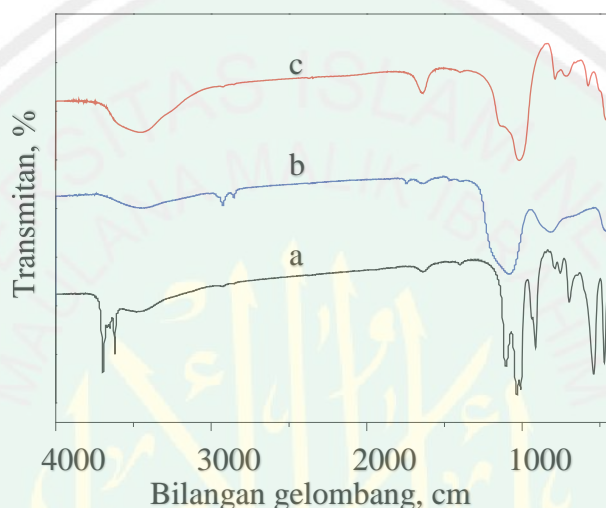
Zeolit NaX dilaporkan telah berhasil disintesis menggunakan metode hidrotermal (Chandrasekar dan Pramada, (1999), Wajima, dkk. (2008), Thuadaj dan Nuntinya, (2012), Ma, dkk. (2014), Ngoc, dkk. (2013), Zhang, dkk. (2015), Ghrib, dkk. (2016), sedangkan sintesis zeolit NaX menggunakan metode sonikasi masih sedikit dilaporkan (Belviso, dkk. 2013). Zeolit NaX dilaporkan telah berhasil disintesis menggunakan metode hidrotermal pada suhu 90°C selama 8 jam dengan suhu aging 50°C selama 2 jam (Ma, dkk. 2014). Analisa sintesis zeolit NaX menggunakan XRD mulai dari *raw material* hingga menjadi zeolit NaX diperlihatkan seperti pada Gambar 2.8.



Gambar 2.8 Hasil analisa XRD metakaolin (a), kristalisasi 1 jam (b), 4 jam (c) 6 jam (d), 8 jam (e), 12 jam (f), dan 24 jam (g) (Ma, dkk. 2014)

Berdasarkan Gambar 2.8 analisa menggunakan XRD pada sintesis zeolit NaX menggunakan metode hidrotermal menghasilkan zeolit NaX yang sesuai dengan standar (IZA, 2010) pada waktu kristalisasi 8 jam. waktu kristalisasi lebih

dari 8 jam menghasilkan zeolit NaX dengan pengotor sodalit sedangkan waktu kristalisasi kurang dari 8 jam menghasilkan zeolit NaX dengan pengotor zeolit NaA. Hasil analisa XRD tersebut didukung pula oleh hasil analisa menggunakan FTIR seperti pada Gambar 2.10.

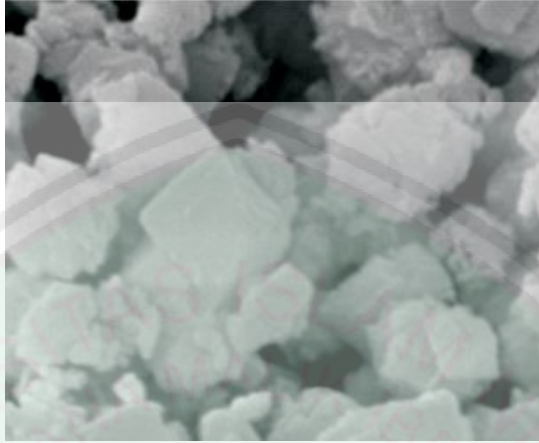


Gambar 2.9 Analisa menggunakan FTIR pada kaolin (a), metakaolin (b) dan zeolit NaX (c) (Li, dkk. 2010)

Berdasarkan analisa dengan FTIR pada Gambar 2.9 kaolin memiliki 10 puncak khas pada daerah $1400\text{-}400\text{ cm}^{-1}$. Sedangkan metakaolin memiliki puncak pada $1100, 800$ dan 470 cm^{-1} , puncak tersebut merupakan puncak dari vibrasi tetrahedral *sheet*, silika bebas, dan *bending* struktur. Analisa zeolit NaX menggunakan FTIR telah dilaporkan menghasilkan karakteristik zeolit NaX berupa serapan dari regangan asimetrik T-O-T (T berupa Si/Al) pada 978 cm^{-1} , serapan simetrik T-O-T pada 668 cm^{-1} , bending T-O pada 458 cm^{-1} , serapan D6R pada 561 cm^{-1} dan bending H₂O pada 1640 cm^{-1} (Li, dkk. 2010).

Analisa morfologi dari zeolit NaX dapat dilakukan dengan menggunakan SEM. Analisa zeolit NaX menggunakan SEM ditunjukkan seperti pada Gambar

2.10. Berdasarkan Gambar 2.10 zeolit NaX yang dihasilkan memiliki ukuran seragam dan memiliki diameter partikel sekitar 700-800 nm.



Gambar 2.10 Analisa zeolit NaX menggunakan SEM (Ghrib, dkk. 2016)

Perbandingan Sintesis zeolit menggunakan metode hidrotermal dan metode sonikasi dilaporkan telah berhasil dilakukan untuk sintesis zeolit NaA (Kim, dkk. 2010). Sintesis Zeolit NaA menggunakan metode hidrotermal menghasilkan zeolit NaA murni pada waktu kristalisasi 240 menit dengan suhu kristalisasi 75°C sementara sintesis menggunakan metode sonikasi dilaporkan menghasilkan zeolit NaA murni pada waktu kristalisasi 120 menit dengan suhu yang sama (Kim, dkk. 2010). Zeolit NaA yang dihasilkan menggunakan metode sonikasi juga dilaporkan memiliki keunggulan seperti kristalinitas yang lebih tinggi, kapasitas penukar kation yang tinggi, dan ukuran partikel yang lebih kecil dibandingkan zeolit NaA yang dihasilkan dari metode hidrotermal (Kim, dkk. 2010).

Penelitian mengenai sintesis zeolit NaX metode sonikasi penting dilakukan karena informasi mengenai metode sintesis tersebut masih sedikit. Penelitian ini akan dilakukan dengan membandingkan metode hidrotermal dan

metode sonikasi untuk sintesis zeolit NaX dari metakaolin sehingga diketahui metode yang paling optimum untuk menghasilkan zeolit NaX yang lebih murni. Selain menggunakan perbandingan metode sintesis juga dilakukan dengan menggunakan variasi waktu kristalisasi pada kedua metode. Waktu kristalisasi yang digunakan menggunakan metode hidrotermal maupun sonikasi adalah 2 jam dan 4 jam.





BAB III

METODOLOGI

3.1 Pelaksanaan Penelitian

Penelitian ini dilaksanakan pada bulan November 2017 – Maret 2018 di Laboratorium Kimia Anorganik dan Laboratorium Instrumentasi Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Islam Negeri (UIN) Maulana Malik Ibrahim Malang, Laboratorium Sentral Mineral dan Material Maju FMIPA Universitas Negeri Malang (UM), Laboratorium Material dan Metalurgi Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS) Surabaya.

3.2 Alat dan Bahan

3.2.1 Alat

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah neraca analitik, seperangkat alat gelas, *magnetic stirrer*, *hot plate*, oven, mortar dan alu, botol akuades, pH universal, seperangkat alat penyaring vakum, reaktor hidrotermal, *ultrasonic cleaner* (Branson Ultrasonics model B3510-MT), *X-Ray Diffraction* (Philip tipe X pert MPD), *X-Ray Fluorocence* (XRF), dan *scanning electron microscope* (SEM) tipe JSM 6510.

3.2.2 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan adalah kaolin Blitar, kertas saring, NaOH 99% (Sigma Aldrich), Aluminium Oksida (Al_2O_3) (Merck), dan akuades.

3.3 Rancangan Penelitian

Penelitian yang dilakukan meliputi karakterisasi kaolin, metakaolin, dan Zeolit NaX menggunakan XRD. Kemudian analisa metakaolin dan Zeolit NaX dengan menggunakan SEM. Proses penelitian untuk sintesis Zeolit NaX dilakukan dengan 2 tahap. Pertama adalah sintesis metakaolin kemudian dilanjutkan dengan

sintesis zeolit NaX dari metakaolin. Sintesis metakaolin dilakukan menggunakan metode alkali fusi sedangkan sintesis Zeolit NaX dilakukan dengan metode hidrotermal dan sonikasi.

3.4 Tahapan Penelitian

Tahapan penelitian dilakukan yaitu sebagai berikut :

1. Preparasi sampel
2. Karakterisasi kaolin menggunakan XRD, XRF, FTIR, dan SEM
3. Sintesis metakaolin dari kaolin menggunakan metode alkali fusi
4. Karakterisasi metakaolin dengan XRD, FTIR dan SEM
5. Sintesis zeolit NaX dari kaolin menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi
6. Karakterisasi Zeolit NaX menggunakan XRD, FTIR, dan SEM

3.5 Cara Kerja

3.5.1 Preparasi Sampel Kaolin

Sampel kaolin dicuci dengan aquades kemudian dikeringkan. Kaolin kemudian dihaluskan dan diayak menggunakan ayakan 200-230 mesh (Ismail, 2013). Selanjutnya kaolin yang lolos ayakan 200 mesh dan tidak lolos ayakan 230 mesh dicuci menggunakan asam klorida (HCl) 1M. Kaolin 10 gram dan 20 mL HCl diaduk dengan *stirrer* selama 1 jam. Kemudian, kaolin dicuci dan disaring dengan aquades hingga pH 7 dan dikeringkan pada suhu 100°C selama 1 jam. Kaolin selanjutnya dikarakterisasi menggunakan XRD, XRF, FTIR, dan SEM.

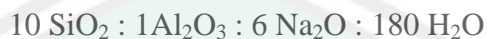
3.5.2 Konversi Kaolin Menjadi Metakaolin (Ma, dkk. 2014)

Kaolin dikonversi menjadi metakaolin menggunakan metode alkali fusi, 4,29 g kaolin dan 8,58 g NaOH dicampur dan digerus selama 30 menit kemudian

dikalsinasi pada suhu 600°C selama 1 jam. Metakaolin kemudian digerus sampai menjadi serbuk dan dikarakterisasi menggunakan XRD, FTIR, dan SEM.

3.5.3 Sintesis Zeolit NaX Metode Hidrotermal (Chandrasekar dan Pramada, 2004)

Sintesis zeolit NaX dilakukan dengan menggunakan rasio molar :



10,8 gram metakaolin ditambah 0,106 gram Al_2O_3 dicampur dengan 32,4 mL H_2O . Campuran kemudian didiamkan pada suhu ruang selama 10 hari dan kemudian dipanaskan menggunakan suhu 100°C selama 2 jam dan 4 jam pada reaktor hidrotermal. Hasil sintesis kemudian disaring dan dicuci dengan aquades sampai pH 9 atau 10. Zeolit NaX yang diperoleh kemudian dikeringkan pada suhu 100°C selama 12 jam dan selanjutnya dikarakterisasi menggunakan, XRD, FTIR, dan SEM.

3.5.4 Sintesis Zeolit NaX Metode Sonikasi (Kim, dkk. 2010)

Campuran reaktan yang digunakan pada sonikasi sama seperti pada metode hidrotermal. Campuran kemudian didiamkan pada suhu ruang selama 10 hari kemudian dimasukkan dalam vial HDPE. Sonikasi dilakukan dengan frekuensi gelombang 42 KHz dan daya 100 W menggunakan suhu 69°C selama 2 jam dan 4 jam. Setelah disonikasi kemudian material hasil sintesis disaring dan dicuci dengan aquades sampai pH 9 atau 10. Zeolit NaX kemudian dikeringkan pada suhu 100°C selama 1 hari dan dikarakterisasi menggunakan, XRD, FTIR, dan SEM.

3.6 Karakterisasi Material Sintesis

3.6.1 Karakterisasi Kaolin Menggunakan *X-Ray Fluorescence* (XRF)

Karakterisasi kaolin dengan menggunakan XRF bertujuan untuk mengetahui kandungan unsur-unsur di dalam kaolin. Sampel kaolin dihaluskan menjadi ukuran 200 mesh kemudian diletakkan dalam *sampel holder*. XRF diatur menggunakan radiasi foton 20 kV, arus 128 uA selama 60 detik.

3.6.2 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan Teknik Difraksi Sinar-X (XRD)

Karakterisasi menggunakan XRD dilakukan pada sampel kaolin, metakaolin, dan zeolite NaX yang telah disintesis. Masing-masing sampel dihaluskan menjadi bubuk kemudian ditempatkan pada *sampel holder*. XRD diatur menggunakan radiasi sinar-X Cu K α sebesar 1,541 Å dengan sudut 2 θ rentang 5-50° dan kecepatan scan 3°/menit.

3.6.3 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin dan Zeolit NaX Menggunakan Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR)

Karakterisasi menggunakan FTIR dilakukan pada sampel kaolin, metakaolin dan zeolit NaX hasil sintesis. Sampel berbentuk serbuk halus sebanyak 10 mg digerus bersama 300 mg serbuk KBr kering di dalam *mortar agate*. Campuran kemudian dipres untuk mendapatkan 3 mm pellet KBr. Analisis dilakukan pada bilangan gelombang 4000 - 400 cm⁻¹.

3.6.4 Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan Scanning Electron Microscopy (SEM)

Karakterisasi dengan SEM dilakukan pada sampel kaolin, metakaolin, dan zeolit NaX hasil sintesis. Masing-masing sampel diambil 5 mg dan diletakkan dalam *sampel holder*. Kemudian sampel dianalisa morfologinya dengan menggunakan perbesaran 5000 sampai 20.000 kali sehingga ukuran dan bentuk partikel jelas.

3.7 Analisis Data

3.7.1 Analisis Data Hasil Karakterisasi Kaolin Menggunakan *X-Ray Fluorescence* (XRF)

Hasil karakterisasi kaolin menggunakan XRF disajikan dalam bentuk tabel. Presentase kandungan Si/Al kemudian dihitung, jika rasio Si/Al kurang dari 5 atau lebih dari 5 maka diperlukan penambahan silika atau alumina agar rasio S/Al sesuai dengan rasio zeolite NaX.

3.7.2 Analisis Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD)

Data hasil karakterisasi menggunakan XRD yang diperoleh berupa difraktogram. Data XRD Kaolin digunakan untuk menentukan puncak spesifik kaolin dan juga pengotornya. Data difraktogram metakaolin digunakan untuk menunjukkan keberhasilan sintesis metakaolin yang merupakan material amorf. Pembentukan struktur zeolit NaX ditentukan oleh kemunculan puncak pada daerah 2θ pada difraktogram. Selanjutnya pola puncak-puncak yang terbentuk pada difraktogram dibandingkan dengan referensi untuk mengetahui terbentuknya kristal zeolit NaX. Semakin tinggi intensitas puncak menandakan bahwa kristal zeolit NaX semakin banyak terbentuk.

3.7.3 Analisis Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin dan Zeolit NaX Menggunakan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FT-IR)

Data hasil karakterisasi kaolin, metakaolin dan zeolit NaX dengan FTIR diperoleh data berupa spektra inframerah. Spektra tersebut berupa pola pita-pita serapan inframerah yang muncul pada frekuensi vibrasi spesifik oleh molekul-molekul yang ada pada material. Pita-pita serapan inframerah tersebut muncul

berdasarkan pada % transmittan dan bilangan gelombang. Spektra yang didapatkan kemudian dianalisis dengan cara dibandingkan dengan standar.

3.7.4 Analisa Data Hasil Karakterisasi Kaolin, Metakaolin, dan Zeolit NaX Menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM)

Data hasil karakterisasi kaolin, metakaolin, dan zeolit NaX menggunakan SEM yang diperoleh adalah berupa foto morfologi permukaan meliputi bentuk, ukuran dan keseragaman partikel. Morfologi kaolin berupa layer, morfologi metakaolin berupa material amorf, morfologi zeolite NaX berupa kristal.

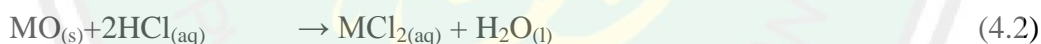
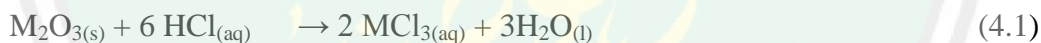


BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Preparasi Kaolin

Kaolin pada penelitian ini digunakan sebagai sumber silika dan alumina untuk sintesis zeolit NaX. Kaolin yang berasal dari alam umumnya masih mengandung pengotor seperti pengotor fisik maupun logam. Pengotor fisik seperti tanah dapat dihilangkan dengan pencucian menggunakan akuades sedangkan pengotor logam dihilangkan dengan pencucian menggunakan asam (HCl 1 M). Reaksi pelarutan logam menggunakan HCl secara umum ditampilkan pada Persamaan 4.1 dan 4.2. Perubahan kandungan unsur logam kaolin sebelum dan sesudah pencucian dengan HCl 1 M yang dianalisa menggunakan XRF disajikan pada Tabel 4.1.



Tabel 4.1 Kandungan mineral kaolin

Logam	Konsentrasi (% wt)	Konsentrasi (% wt)
	sebelum dicuci dengan HCl 1M	setelah dicuci dengan HCl 1 M
Al	14	9,6
Si	65,7	76,1
K	6,18	6,44
Ca	5,41	1,84
Cr	0,14	0,06
Ti	3,01	3,19
V	0,11	0,091
Mn	0,19	0,20
Fe	2,23	2,27
Ni	0,087	0,03
Cu	0,071	0,093
Yb	0,07	0,06

Berdasarkan Tabel 4.1 logam Si, K, Ti, Mn, Fe, dan Cu mengalami peningkatan persentase, sementara logam Al, Ca, Cr, V, Ni, dan Yb mengalami penurunan persentase. Persentase silika meningkat karena SiO_2 relatif tidak reaktif terhadap asam-asam pada suhu ruang atau pada suhu yang lebih tinggi (Cotton dan Wilkison, 1989). Persentase logam titanium (Ti) meningkat karena logam dan oksida logam titanium tidak dapat larut dalam asam klorida maupun asam sulfat encer (Svehla, 1979). Selanjutnya, logam mangan (Mn) mengalami penurunan karena oksida mangan tereduksi dalam asam dan cenderung membentuk ion mangan (II) (Svehla, 1979).

Berdasarkan hasil analisa tersebut, pencucian menggunakan asam (HCl 1 M) tidak menyebabkan penurunan logam yang signifikan, namun dapat menurunkan konsentrasi beberapa logam yang bersifat larut dalam asam, sedangkan logam aluminium mengalami penurunan paling signifikan disebabkan aluminium bersifat amfoter sehingga larut dalam asam maupun basa. Logam-logam lain tidak mengalami penurunan karena struktur kaolin alam yang *rigid* sehingga kation pengimbang yang berupa logam tidak mudah dihilangkan meskipun dengan pencucian menggunakan asam.

Pencucian kaolin menggunakan HCl selain mengurangi kadar logam juga menyebabkan adanya pengotor lain berupa anion Cl^- . Anion Cl^- yang masih tersisa di dalam sampel kaolin akan bereaksi dengan NaOH dan membentuk NaCl sehingga mengganggu perombakan struktur kaolin oleh NaOH. Anion Cl^- dihilangkan dengan pencucian menggunakan akuades dan untuk memastikan tidak adanya anion Cl^- , filtrat hasil pencucian ditambah dengan AgNO_3 . Anion Cl^- akan bereaksi dengan Ag^+ membentuk endapan putih AgCl.

Hasil karakterisasi kaolin menggunakan XRF juga menunjukkan bahwa kaolin alam Blitar mengandung silika 76,1 % dan alumina 9,6 %. Kadar silika dan alumina tersebut dapat dimanfaatkan sebagai bahan sintesis zeolit dibanding menggunakan prekursor komersil yang mahal, sehingga pada dasarnya Allah SWT telah memenuhi segala kebutuhan manusia dengan ciptaan-Nya, seperti firman Allah pada surat al-Baqarah (2) : 29.

هُوَ الَّذِي خَلَقَ لَكُمْ مَّا فِي الْأَرْضِ جَمِيعًا ثُمَّ اسْتَوَىٰ إِلَى السَّمَاءِ فَسَوَّاهُنَّ سَبْعَ سَمَاوَاتٍ
وَهُوَ بِكُلِّ شَيْءٍ عَلِيمٌ (٢٩)

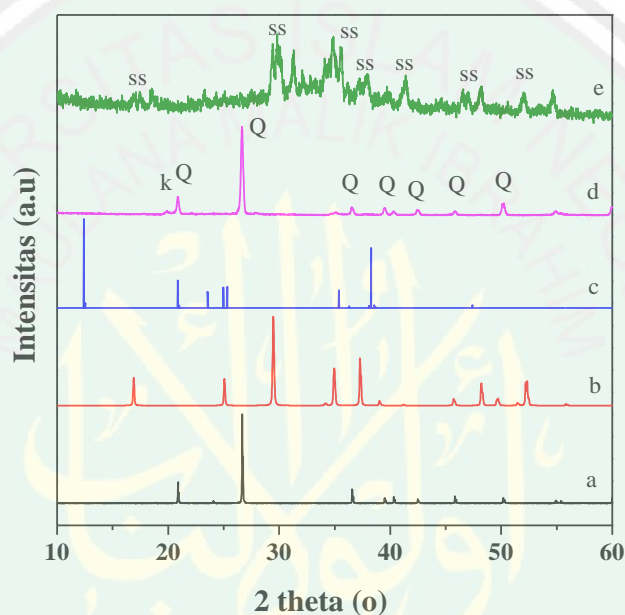
Artinya: “Dialah Allah, yang menjadikan segala yang ada di bumi untuk kamu dan Dia berkehendak (menciptakan) langit, lalu dijadikan-Nya tujuh langit. Dan Dia Maha Mengetahui segala sesuatu.” (QS. Al-Baqarah (2) : 29).

Kata *هُوَ الَّذِي خَلَقَ لَكُمْ مَّا فِي الْأَرْضِ جَمِيعًا* menurut al Qatadah memiliki makna Allah SWT menundukkan segala yang ada di bumi untuk manusia sebagai anugrah dan nikmat dari Allah SWT. Kata tersebut mempunyai arti segala nikmat di bumi yang banyak ragamnya, berupa barang tambang, tumbuhan, binatang, gunung, lautan, dan lain-lain telah disediakan oleh Allah SWT untuk memenuhi kebutuhan manusia agar dimanfaatkan untuk kepentingan manusia (Khazin, 1991). Salah satu jenis batuan adalah kaolin, kaolin diciptakan dengan kadar silika dan alumina yang tinggi sehingga dapat dijadikan material sintesis zeolit.

4.2 Perubahan Kaolin Menjadi Metakaolin

Kaolin merupakan mineral yang stabil pada suhu tinggi sehingga tidak dapat dijadikan material sintesis zeolit secara langsung (Kovo, dkk. 2009). Kaolin harus diubah menjadi spesies yang relatif tidak stabil sehingga mudah disintesis menjadi zeolit NaX. Salah satu prekursor yang dapat digunakan untuk sintesis zeolit NaX

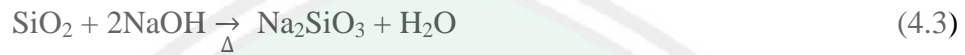
adalah metakaolin yang merupakan bentuk dehidroksilasi dari kaolin melalui proses alkali fusi. Proses alkali fusi dilakukan dengan menggerus kaolin dan NaOH diikuti dengan pemanasan pada suhu tinggi. Proses alkali fusi dilakukan dengan rasio berat NaOH/kaolin 2. NaOH pada alkali fusi berfungsi untuk menghilangkan pengotor yang ada pada kaolin seperti pengotor kuarsa.



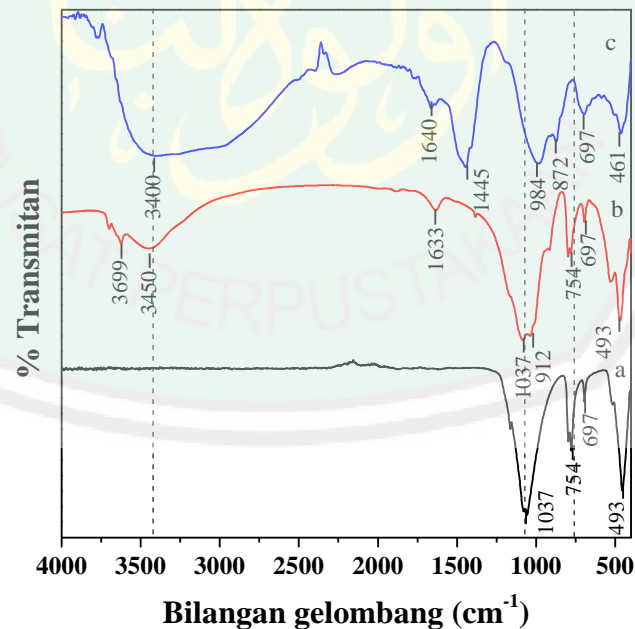
Gambar 4.1 Difraktogram (a) standar kuarsa, (b) standar sodium silikat, (c) std kaolin (d) kaolin alam, (e) hasil proses alkali fusi (600°C , 1 jam, Q= kuarsa, k= kaolin, ss= sodium silikat)

Perubahan struktur kaolin setelah proses alkali fusi dianalisis menggunakan XRD. Hasil analisa XRD Gambar 4.1. menunjukkan bahwa kaolin alam memiliki pengotor kuarsa yang tinggi (d), dan setelah proses alkali fusi struktur kaolin dan kuarsa tidak bertransformasi menjadi metakaolin melainkan sodium silikat (e). Kuarsa pada kaolin alam ditunjukkan pada 2 theta 21° , 27° , $36,5^{\circ}$, dan $40,5^{\circ}$ sedangkan puncak kaolin muncul pada 2 theta 20° , setelah proses alkali fusi puncak kaolin maupun kuarsa tersebut hilang dan muncul 2 theta

spesifik pada 17°, 25°, 29,05°, 35,05°, 38°, dan 49,05° yang menunjukkan terbentuknya sodium silikat. Sodium silikat terbentuk dari reaksi kuarsa pada kaolin dengan NaOH pada proses alkali fusi seperti pada Persamaan 4.3 (Pranowo, dkk. 2017).



Sodium silikat juga merupakan salah satu sumber silika untuk sintesis zeolit sehingga terbentuknya sodium silikat tidak mengganggu sintesis zeolit selanjutnya. Hal ini menunjukkan bahwa perubahan kaolin menjadi fase metastabil (sodium silikat) sudah sempurna dan proses alkali fusi efektif untuk diterapkan pada material *low grade* seperti kaolin.



Gambar 4.2 Spektra inframerah (a) standar kuarsa, (b) kaolin, dan (c) hasil proses alkali fusi

Kaolin dan hasil proses alkali fusi kemudian dianalisa menggunakan FTIR untuk mendukung hasil analisa XRD. Analisa dengan FTIR digunakan untuk mengetahui perubahan gugus fungsi dan vibrasi molekul dari kaolin akibat proses alkali fusi. Hasil analisis menggunakan FTIR (Gambar 4.2) menunjukkan bahwa kaolin memiliki pengotor kuarsa yang tinggi ditandai dengan serapan vibrasi silika bebas dari kuarsa pada bilangan gelombang 754 cm^{-1} (a), sedangkan kaolin memiliki serapan dari regangan Al-O-H pada daerah 3699 dan 3450 cm^{-1} , H_2O *bending* pada 1633 cm^{-1} , regangan T-O-T asimetrik tetrahedral pada 1037 cm^{-1} , regangan Al-OH oktahedral pada 912 cm^{-1} , T-O-T (T = Si atau Al) simetrik *bending* pada 694 dan 528 cm^{-1} dan T-O-T asimetrik *bending* pada 493 cm^{-1} .

Setelah proses alkali fusi perubahan kaolin menjadi sodium silikat menyebabkan pergeseran serapan T-O-T asimetrik pada 1037 cm^{-1} menjadi 984 cm^{-1} serta hilangnya serapan pada 3699 cm^{-1} , 912 cm^{-1} , 754 cm^{-1} dan munculnya serapan pada 872 cm^{-1} (Tabel 4.2). Perubahan serapan tersebut mengindikasikan adanya perubahan struktur dari alumina oktahedral pada kaolin menjadi alumina tetrahedral pada metakaolin, hal ini mengindikasikan bahwa pada proses alkali fusi kaolin tidak hanya bertransformasi menjadi sodium silikat tetapi juga metakaolin. Transformasi tersebut tidak teramati pada analisa menggunakan XRD karena metakaolin hanya menghasilkan difraktogram yang amorf.

Selain hilangnya serapan dari alumina oktahedral, proses alkali fusi juga menyebabkan munculnya serapan dari vibrasi O-H pada bilangan gelombang 3400 cm^{-1} yang merupakan serapan dari sodium silikat, serapan tersebut melebar karena sodium silikat yang terbentuk bersifat higroskopis, kemudian serapan dari regangan T-O-T asimetrik pada 984 cm^{-1} , T-O-T simetrik *bending* pada 697 cm^{-1}

dan 520 cm^{-1} , T-O-T asimetrik *bending* pada 461 cm^{-1} dan regangan C-O asimetrik dari Na_2CO_3 pada 1445 cm^{-1} . Serapan C-O asimetrik (Na_2CO_3) muncul dari reaksi sodium silikat dengan gas karbon dioksida di udara. Reaksi antara sodium silikat dengan karbon dioksida ditunjukkan melalui Persamaan 4.4 (Rodr dan Pfei, 2013).



Berdasarkan analisa menggunakan FTIR tersebut, proses alkali fusi menyebabkan terbentuknya metakaolin dan sodium silikat meskipun sodium silikat lebih dominan sesuai dengan hasil analisa menggunakan XRD.

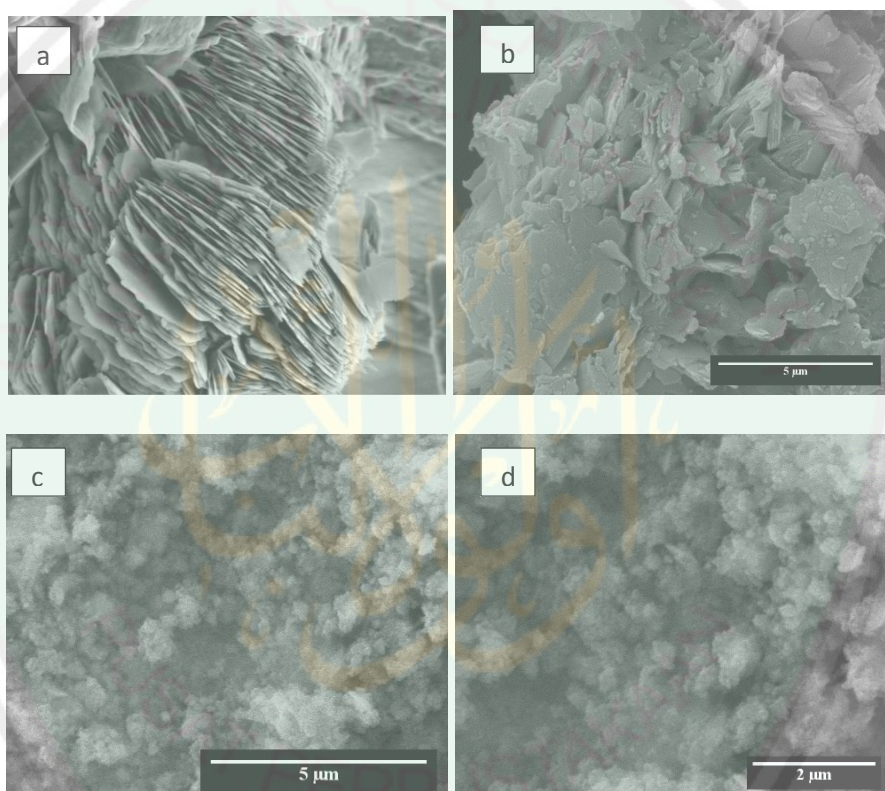
Tabel 4.2 Interpretasi spektra FTIR kaolin dan metakaolin

Bilangan Gelombang (cm^{-1})			
Kaolin	Sodium Silikat ref (***)	Sodium silikat	Keterangan (Jenis Vibrasi)
3699	-	-	Regangan Al-OH antar lapisan*
3450	3436	3400	Regangan O-H*
1633	1634	1640	H-O-H <i>Bending</i> *
-	1425	1445	Regangan C-O asimetrik dari Na_2CO_3 ***
1037	1045	984	Regangan T-O-T asimetrik tetrahedral***
912	-	-	Regangan Al-OH (oktahedral)***
-	-	872	Regangan Al-O (tetrahedral)**
754	-	-	Si-O bebas (kuarsa)*
694	-	697	Regangan T-O-T simetrik**
528	-	520	T-O-T simetrik <i>bending</i> **
468	465	461	T-O-T asimetrik <i>bending</i> *

*Saikia dan Parthasarathy (2010), **Ekosse (2005) ***Carrasco, dkk. (2017)

Perubahan struktur dari kaolin menjadi sodium silikat juga dapat dilihat dari perubahan morfologinya. Analisa morfologi dari kaolin dan sodium silikat dianalisa menggunakan SEM. Hasil analisa morfologi menggunakan SEM (Gambar 4.3) menunjukkan bahwa kaolin alam memiliki morfologi berupa

lempengan yang tersusun berlapis-lapis yang merupakan tumpukan silika tetrahedral dan alumina oktahedral (a dan b), sementara pada sodium silikat (c dan d) morfologi menjadi tidak beraturan (*amorf*) akibat proses dehidroksilasi. Berdasarkan karakterisasi menggunakan FTIR, SEM dan XRD perubahan kaolin menjadi sodium silikat sudah sempurna.



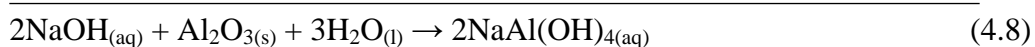
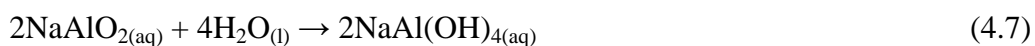
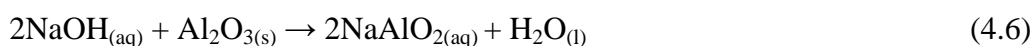
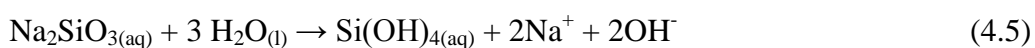
Gambar 4.3. Morfologi SEM standar kaolin(a), kaolin Blitar perbesaran 20.000x (b) dan metakaolin pada perbesaran (c) 15000x, (d) 25.000x

4.3 Sintesis Zeolit NaX dari Sodium Silikat dengan Metode Hidrotermal dan Sonikasi

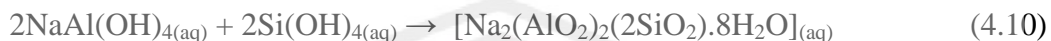
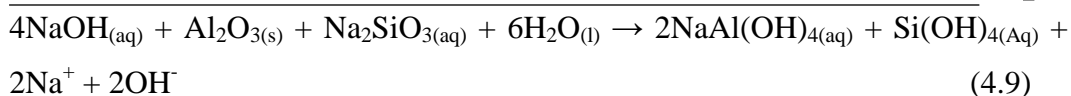
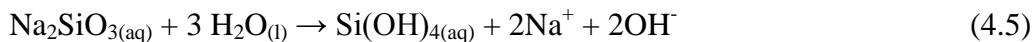
Sintesis zeolit NaX dilakukan menggunakan metode hidrotermal dan sonikasi dengan rasio molar Si/Al 10 dan rasio molar $\text{Na}_2\text{O}/\text{SiO}_2$ 0,96. Variasi waktu kristalisasi yang digunakan yaitu selama 2 jam dan 4 jam pada kedua

metode. Sedangkan suhu yang digunakan adalah 70°C pada sonikasi dan 100°C pada metode hidrotermal.

Pembentukan kristal zeolit dimulai pada waktu *aging* atau pemeraman. Proses pemeraman selain berfungsi untuk meningkatkan kristalinitas produk juga berfungsi untuk menghomogenkan reaktan sehingga reaksi dapat berjalan secara maksimal. Waktu *aging* yang digunakan adalah selama 10 hari. *Aging* yang lama akan menghasilkan produk yang lebih seragam disebabkan jumlah silikat yang masuk kedalam polimer alumina silikat akan semakin banyak sehingga jumlah inti yang terbentuk lebih banyak dan seragam (Johnson dan Arsyad, 2014). Sodium silikat yang dihasilkan dari proses alkali fusi pada pembentukan zeolit bereaksi dengan air membentuk spesi silikat (Persamaan 4.5) dan sisa NaOH pada sodium silikat akan bereaksi dengan alumina yang ditambahkan membentuk sodium aluminat (Persamaan 4.6) yang kemudian membentuk spesi aluminat ($[Al(OH)_4]^-$) (Persamaan 4.7). Spesi silikat yang terbentuk bersifat reaktif karena memiliki pasangan elektron bebas dari atom oksigen (O) sehingga akan bereaksi dengan mengikat spesi silikat lainnya. Spesi silikat tersebut juga akan bereaksi dengan spesi aluminat yang ada membentuk polimer alumina silikat. Secara umum mekanisme reaksi yang terjadi saat *aging* ditampilkan pada Persamaan 4.5 hingga 4.10.



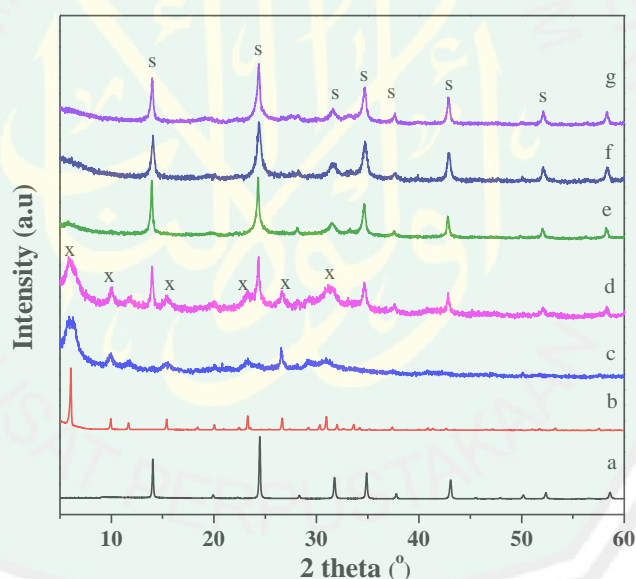
Penjumlahan reaksi pada Persamaan 4.6 dan 4.9:



Tahap pembentukan kristal zeolit kemudian dilanjutkan pada proses kristalisasi atau pemanasan yang dapat dilakukan menggunakan metode hidrothermal maupun metode sonikasi. Proses kristalisasi bertujuan untuk menyempurnakan dan menyeragamkan pertumbuhan kristal zeolit. Pemanasan atau kristalisasi menyebabkan campuran aluminosilikat mengalami penataan ulang sehingga strukturnya lebih teratur dan terbentuk kristal (Persamaan 4.11). Selain itu, lama waktu pemanasan juga berpengaruh pada jenis zeolit yang terbentuk karena semakin lama pemanasan, energi yang diberikan akan semakin besar sehingga struktur zeolit yang telah terbentuk dapat mengalami penataan ulang menjadi zeolit lain.

Hasil sintesis dianalisa menggunakan XRD untuk mengidentifikasi fase kristal dan mengetahui jenis mineral yang terbentuk. Hasil XRD kemudian dibandingkan dengan difraktogram standar dari *international zeolite Association* (IZA). Hasil difraktogram sintesis zeolit metode hidrotermal (Gambar 4.4) menunjukkan bahwa waktu kristalisasi 2 jam menghasilkan zeolit NaX murni dengan 2θ ($^\circ$) = 6,05; 9,98; 12,13; 15,39; 20,04; 23,29; 26,67; dan 30,96 $^\circ$ yang sesuai standar zeolit NaX. Waktu kristalisasi 4 jam menghasilkan zeolit NaX dengan pengotor sodalit yang ditandai munculnya puncak pada 2θ ($^\circ$) = 14,5; 24,98; 32,5; 35,01; dan 43,9 $^\circ$ yang merupakan puncak dari sodalit dan

peningkatan waktu kristalisasi menjadi 6 jam, 12 jam, dan 24 jam menghasilkan sodalit murni. Hal tersebut menunjukkan bahwa lama waktu kristalisasi berpengaruh terhadap jenis zeolit yang terbentuk karena menurut aturan Ostwald peningkatan waktu kristalisasi akan menjadikan zeolit fase metastabil seperti NaX dan NaA *terdissolusi* dan membentuk zeolit lain yang lebih stabil seperti sodalit (Subotic, dkk. 1980). Transformasi dari zeolit NaX cenderung mengarah pada sodalit karena keduanya memiliki rasio Si/Al yang rendah, sementara zeolit dengan Si/Al yang tinggi cenderung membentuk zeolit NaP sebagai fasa stabilnya.



Gambar 4.4 Difraktogram sintesis zeolit metode hidrotermal (100°C) (a) standar sodalit (b) standar NaX, (c) zeolite variasi waktu kristalisasi 2 jam, (d) 4 jam, (e) 6 jam, (f) 12 jam, dan (g) 24 jam (x= zeolit NaX, s= sodalit).

Efek topologi seperti densitas framework berpengaruh terhadap stabilitas zeolit, stabilitas sodalit lebih tinggi dari zeolit NaX karena sodalit memiliki densitas *framework* yang lebih besar ($17,2 \text{ T-atom}/1000 \text{ \AA}^3$) dibanding Zeolit

NaX (12.7 T-atom/1000 Å³) (Cejka, dkk. 2007). Densitas framework yang tinggi akan mempertebal dinding antara pori dan *chanel* pada struktur serta meningkatkan kontribusi kolumbik akibat semakin tingginya *madelung field* dan menurunkan energi *lattice* sehingga kestabilan meningkat. Selain itu densitas framework yang tinggi akan mengurangi jumlah air serta kation yang masuk kedalam struktur sehingga struktur lebih stabil (Gruciani, 2006). Zeolit NaX yang memiliki struktur cincin terbuka (D6R) mengakibatkan strukturnya memiliki densitas yang kecil dan pori pori yang besar sehingga air dan ion OH⁻ yang ada pada pelarut hidrotermal mudah terdifusi kedalam struktur, adanya ion OH⁻ serta pemanasan akan menyebabkan alumina dan silika yang ada pada zeolit *terdissolusi* menjadi spesies aluminat dan silikat., spesies aluminat dan silikat tersebut kemudian membentuk sodalit (Subotic, dkk. 1980).

Hasil difraktogram sintesis zeolit NaX metode hidrotermal juga menunjukkan bahwa sintesis zeolit NaX selain dominan dipengaruhi rasio komposisi (Chandrasekar, dkk. 2004) juga dipengaruhi oleh faktor lain seperti waktu kristalisasi yang mengindikasikan bahwa segala yang ada di alam telah diciptakan sesuai dengan ukurannya masing- masing (*mauzun*) termasuk dalam zeolit NaX, baik berupa rasio maupun ukuran lain seperti lama waktu kristalisasi, sesuai dengan firman Allah SWT dalam surat al-Hijr (45) : 19. Ayat tersebut juga menegaskan bahwa Allah SWT adalah sebaik baik pencipta dan manusia hanya dapat menciptakan segala sesuatu melalui pengetahuan yang didapat dari ciptaan Allah SWT termasuk di dalamnya ukuran-ukuran yang telah ditentukan oleh Allah SWT. Kesempurnaan ciptaan Allah SWT tersebut juga merupakan salah satu tanda-tanda kekuasaan Allah SWT, yang menunjukkan bahwa Allah SWT

adalah Dzat yang maha sempurna. Hal tersebut ditunjukkan oleh firman-Nya pada surah al Imron (3) : 190.

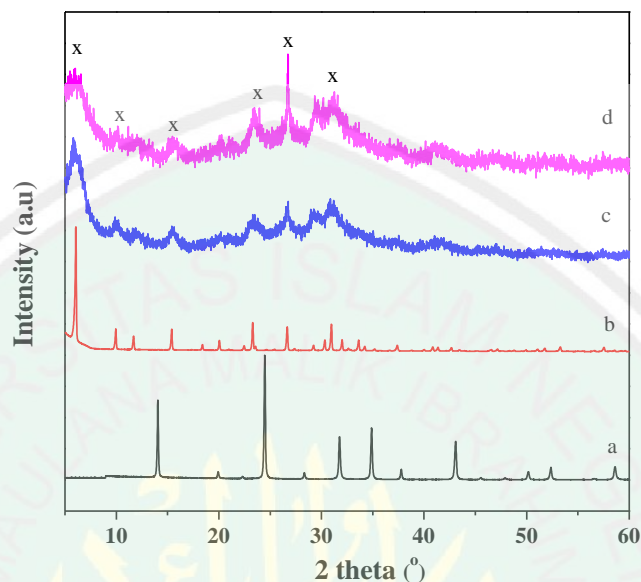
إِنَّ فِي خَلْقِ السَّمَاوَاتِ وَالْأَرْضِ وَاخْتِلَافِ اللَّيْلِ وَالنَّهَارِ لآيَاتٍ لِّأُولِي الْأَلْبَابِ (١٩٠)

Artinya : “*Sesungguhnya dalam penciptaan langit dan bumi, dan silih bergantinya malam dan siang terdapat tanda-tanda bagi orang-orang yang berakal.*” (QS. Al-Imron (3): 190).

Lafadz إِنَّ فِي خَلْقِ السَّمَاوَاتِ وَالْأَرْضِ menjelaskan bahwa dalam *ihwal* ketinggian dan keluasan langit maupun diantara keduanya seperti lautan, hutan, pepohonan, barang tambang, dll. terdapat tanda-tanda kekuasaan yang besar (Katsir, 2010). Kemudian penggalan ayat لآيَاتٍ لِّأُولِي الْأَلْبَابِ dijelaskan dengan makna *tazakkur* (mengingat) dan *tafakkur* (berfikir) sehingga sampai kepada *khidmah* yang ada di balik proses mengingat dan berfikir tersebut, yaitu mengetahui, memahami, dan menghayati, bahwa dibalik fenomena alam dan segala sesuatu yang ada didalamnya menunjukkan adanya sang pencipta. Adanya aturan-aturan yang dibuatnya serta karunia dan berbagai manfaat yang terdapat di dalamnya (alam semesta) (Nata, 2002). Seperti pada zeolit yang diciptakan dengan ukuran yang pasti yang menunjukkan bahwa hanya Allah SWT yang mampu menciptakan sesuatu dengan sempurna.

Hasil analisa XRD sintesis zeolit NaX metode sonikasi ditunjukkan pada Gambar 4.5. Berdasarkan Gambar 4.5, sintesis zeolit NaX metode sonikasi juga menghasilkan zeolit NaX murni baik pada waktu sonikasi 2 jam maupun 4 jam, tetapi pada waktu sonikasi 4 jam menghasilkan kristalinitas yang lebih tinggi. Peningkatan kristalinitas zeolit pada waktu sonikasi 4 jam ditandai dengan meningkatnya intensitas ternormalisasi pada 2θ 26,67°. Berdasarkan hasil analisa tersebut, lama waktu kristalisasi hingga 4 jam pada metode sonikasi tidak

signifikan mempengaruhi jenis zeolit yang dihasilkan dan hanya mempengaruhi derajat kristalinitas zeolit.



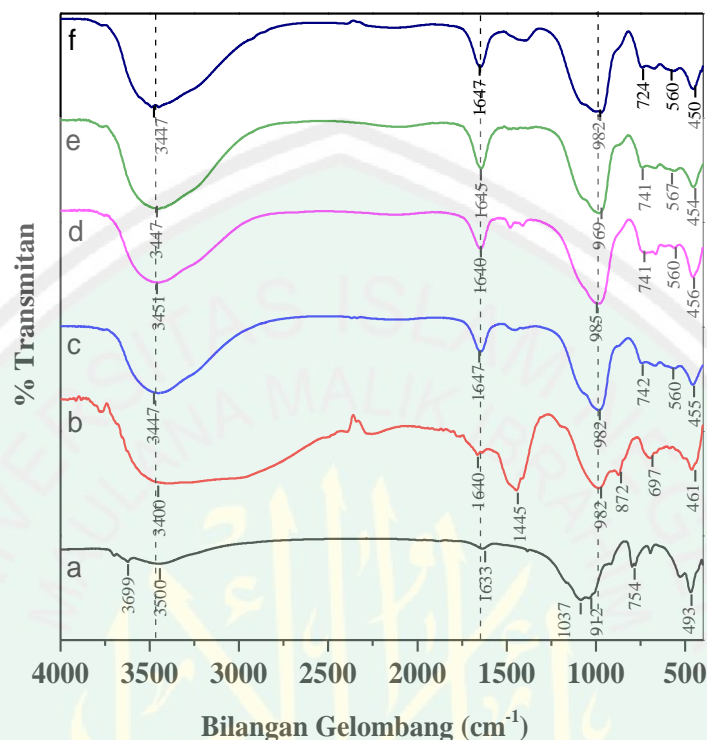
Gambar 4.5 Difraktogram sintesis zeolit metode sonikasi (70°C) (a) standar sodalit (b) standar NaX, (c) zeolite variasi waktu kristalisasi 2 jam, (d) 4 jam (x= zeolit NaX)

Berdasarkan hasil analisa XRD tersebut, Sintesis zeolit metode sonikasi menghasilkan zeolit NaX yang lebih murni dan intensitasnya lebih tinggi dibandingkan metode hidrotermal. Sehingga metode yang lebih tepat untuk sintesis zeolit NaX murni adalah metode sonikasi. Hasil analisa XRD juga dapat digunakan untuk menghitung ukuran kristal zeolit menggunakan perhitungan Debye Scherer's. Berdasarkan perhitungan menggunakan Debye Scherer's (Tabel 4.3), zeolit yang dihasilkan dari metode hidrotermal memiliki ukuran kristal lebih kecil daripada metode sonikasi.

Tabel 4.3. Ukuran kristal zeolit

Zeolit	2 Theta ($^{\circ}$)	Ukuran Kristal (nm)
Hidrotermal 2 jam	26,67	31,8

Hidrotermal 4 jam	26,67	27,9
Sonikasi 2 jam	26,67	36,5
Sonikasi 4 jam	26,67	47



Gambar 4.6 Hasil spektra IR (a) kaolin, (b) kaolin setelah alkali fusi, zeolit NaX metode hidrotermal variasi waktu kristalisasi (c) 2 jam dan (d) 4 jam, zeolit NaX metode sonikasi variasi waktu sonikasi (e) 2 jam dan (f) 4 jam.

Zeolit NaX hasil sintesis selanjutnya dianalisa menggunakan FTIR untuk mengetahui vibrasi antar molekul dari kerangka zeolit. Spektra FTIR Gambar 4.6 menunjukkan perbedaan spektrum antara kaolin, sodium silikat dan zeolit. Kaolin memiliki serapan pada bilangan gelombang 3699, 912 cm⁻¹, 1037 cm⁻¹, dan 754 cm⁻¹ (a), sementara pada spektra sodium silikat, pita serapan muncul pada 1445 cm⁻¹, 984 cm⁻¹, 872 cm⁻¹, 697 cm⁻¹ (b). Setelah sodium silikat diubah menjadi zeolit muncul serapan pada bilangan gelombang 3451 cm⁻¹, 1640 cm⁻¹, 984 cm⁻¹, 741 cm⁻¹, 560 cm⁻¹ dan 455 cm⁻¹ (c dan d) yang merupakan serapan khas dari semua jenis zeolit serta hilangnya serapan pada bilangan gelombang 1445 cm⁻¹

yang menunjukkan hilangnya gugus C-O pada Na_2CO_3 dari sodium silikat. Serapan zeolit NaX pada daerah $3500\text{-}3200\text{ cm}^{-1}$ merupakan regangan O-H (Socrates, 1994), gugus O-H adalah gugus yang dimiliki oleh zeolit dalam bentuk Si-OH. Gugus tersebut diperkuat oleh serapan pada $1650\text{-}1600\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan vibrasi O-H *bending* akibat adanya air yang terabsorb secara fisika. Serapan lain muncul pada bilangan gelombang $1250\text{-}950\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan regangan asimetris internal T-O-T, bilangan gelombang $1150\text{-}1050\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan regangan asimetrik eksternal tetrahedral T-O-T, bilangan gelombang $720\text{-}650\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan regangan simetris internal T-O-T, bilangan gelombang $820\text{-}720\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan regangan simetris eksternal T-O-T dan $650\text{-}500\text{ cm}^{-1}$ yang merupakan regangan cincin D6 ganda (Auerbach, dkk. 2003).

Tabel 4.4 Interpretasi hasil FTIR zeolit NaX dengan standar

No	Bilangan gelombang (cm^{-1})						Jenis Vibrasi
	Kao lin	SS + MK	H-2 jam	H-4 jam	S-2 jam	S-4 jam	
1	3699	-	-	-	-	-	Regangan Al-OH antar lapisan
2	3450	3400	3453	3447	3451	3489	Regangan O-H
3	1633	3400	1648	1647	1640	1645	H_2O <i>bending</i>
4	-	1445	-	-	-	-	Regangan C-O asimetrik daro Na_2CO_3
5	-	-	1061	-	1065	1065	Regangan T-O-T asimetrik eksternal tetrahedral
6	1037	984	984	982	982	969	Regangan T-O-T asimetrik internal tetrahedral
7	912	-	-	-	-	-	Regangan Al-OH Oktahedral
8	-	872	-	-	-	-	Regangan Al-O tetrahedral
9	754	-	-	-	-	-	Si-O bebas (kuarsa)
10	-	-	741	742	741	741	Regangan T-O-T simetrik eksternal
11	694	697	668	666	668	673	Regangan T-O-T simetrik internal
12	528	520	-	-	-	-	T-O-T simetri <i>bending</i>
13	-	-	560	560	562	562	Regangan D6R

14 468 461 455 456 454 450 T-O-T *bending*

*Flanigen, dkk. (1991) (SS=sodium silikat, MK = metakaolin)

Perubahan gugus fungsi pada proses sintesis zeolit di interpretasikan pada Tabel 4.4. Interpretasi hasil FTIR zeolit pada Tabel 4.4 menunjukkan adanya pergeseran serapan dari 1037 cm^{-1} menjadi 984 cm^{-1} akibat berubahnya koordinasi dari alumina oktahedral pada kaolin menjadi alumina tetrahedral pada zeolit, serta munculnya serapan pada bilangan gelombang 1061 dan 560 cm^{-1} yang merupakan serapan dari zeolit faujasit. Serapan tersebut berasal dari vibrasi eksternal cincin ganda yang sensitif terhadap perubahan struktur karena setiap zeolit memiliki struktur cincin ganda yang berbeda. Zeolit NaX yang merupakan zeolit faujasit dibentuk dari kerangka cincin ganda 6 (D6R) sehingga serapan tersebut muncul pada hasil analisa zeolit dengan FTIR (Li, dkk. 2010).

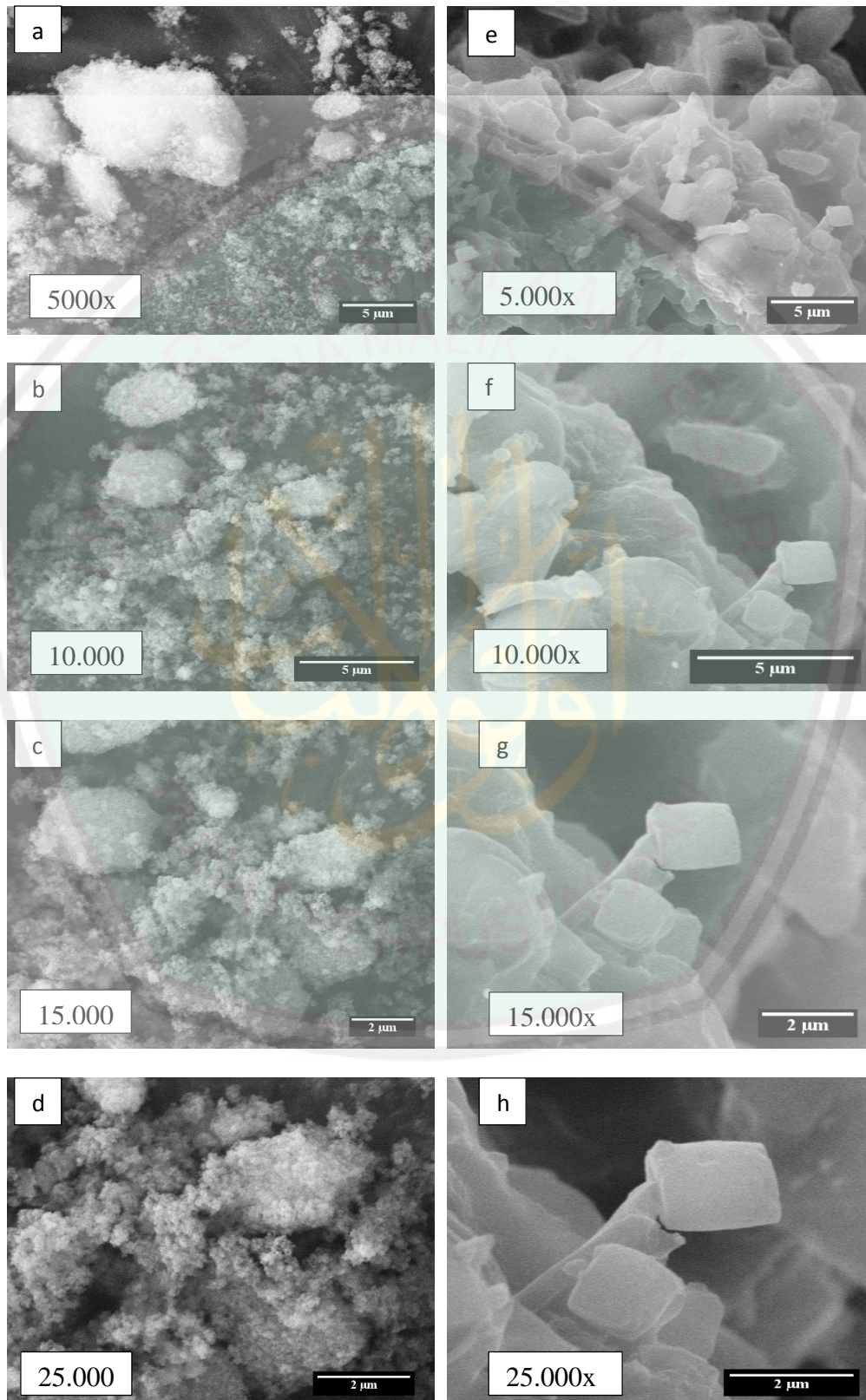
Serapan cincin ganda D6R pada sintesis zeolit metode hidrotermal selama 2 jam muncul pada bilangan gelombang 1061 cm^{-1} dan 560 cm^{-1} sedangkan pada waktu kristalisasi 4 jam serapan 1061 cm^{-1} sedikit menghilang karena zeolit faujasit bertransformasi menjadi sodalit yang tidak memiliki kerangka cincin D6R. Sintesis zeolit metode sonikasi lama waktu 2 jam dan 4 jam juga menunjukkan serapan pada bilangan gelombang 1065 cm^{-1} dan 562 cm^{-1} yang menunjukkan zeolit yang terbentuk adalah zeolit faujasit. Sehingga berdasarkan hasil karakterisasi FTIR, zeolit yang dihasilkan merupakan zeolit jenis faujasit sesuai dengan hasil analisa XRD yang telah dilakukan.

Selanjutnya, dilakukan analisis SEM untuk mengidentifikasi morfologi dari permukaan kristal zeolit yang terbentuk. Zeolit NaX yang memiliki kerangka struktur faujasit umumnya diindikasikan memiliki morfologi seperti kubus (*cubic like*) (Panek, dkk. 2014). Hasil karakterisasi SEM zeolit NaX metode

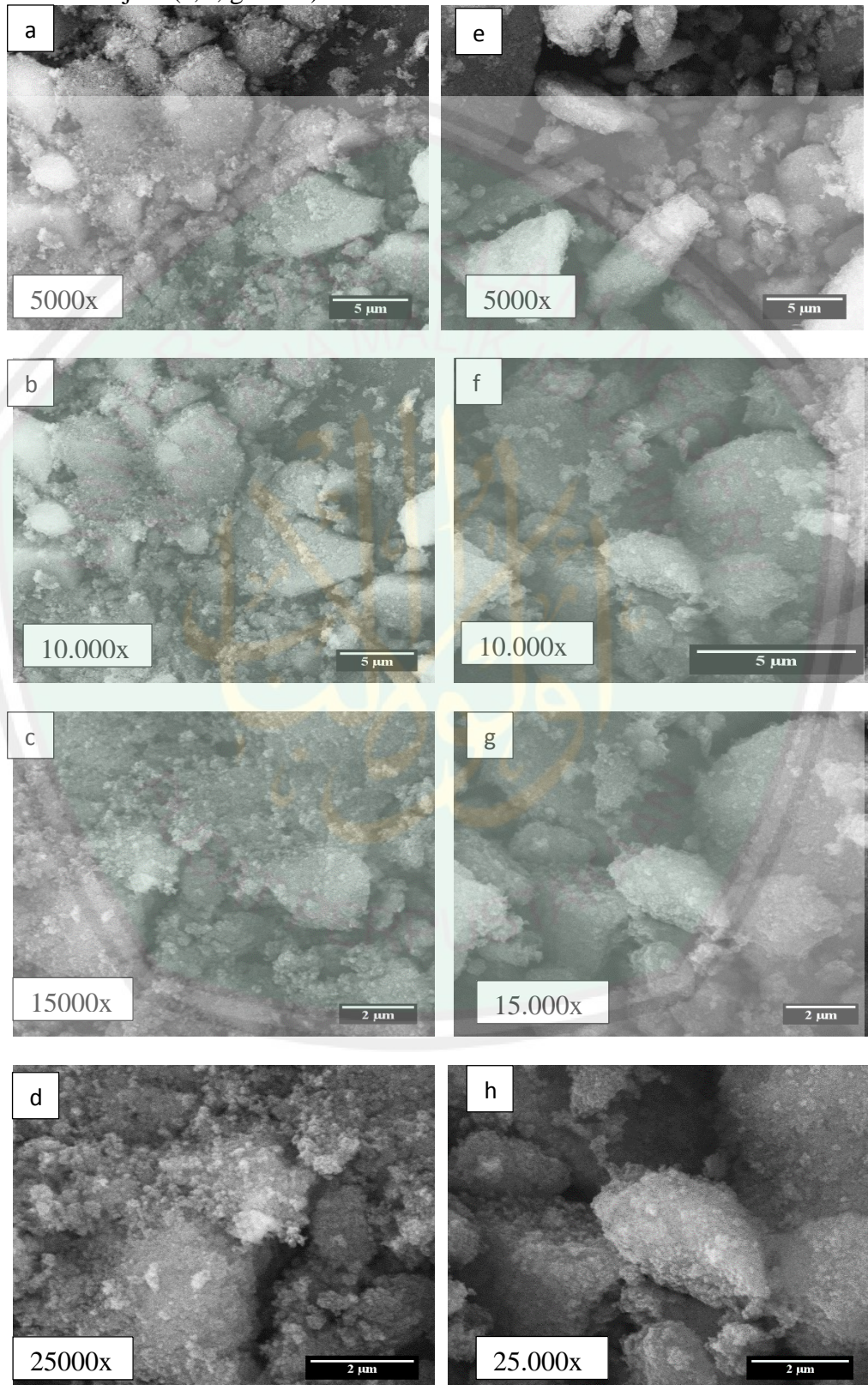
hydrothermal dan sonikasi ditunjukkan pada Gambar 4.7 dan Gambar 4.8. Berdasarkan Gambar 4.7 dan Gambar 4.8 zeolit yang dihasilkan dari metode hidrotermal pada waktu kristalisasi 2 jam memiliki morfologi *irregular* dan pada waktu kristalisasi 4 jam berbentuk seperti kubus meskipun tidak seragam karena mengandung pengotor berupa sodalit (Gambar 4.4). Morfologi dari sodalit umumnya berbentuk bola, tetapi pada hasil karakterisasi morfologi dari sodalit tidak terlihat, hal ini mungkin disebabkan oleh analisa yang hanya dilakukan pada satu titik sehingga tidak mencakup keseluruhan partikel. Zeolit yang dihasilkan dari metode sonikasi juga memiliki morfologi *irregular* pada waktu sonikasi 2 jam dan berupa kristal yang belum sempurna pada waktu sonikasi 4 jam.

Analisa menggunakan SEM menunjukkan bahwa partikel yang dihasilkan dari metode hidrotermal memiliki morfologi yang lebih teratur dan homogen dibanding metode sonikasi. Metode hidrotermal menghasilkan morfologi partikel yang lebih teratur dan homogen karena memanfaatkan tekanan dan temperatur pada ruang tertutup yang menyebabkan perubahan pada sifat fisik air. Air pada metode hidrotermal mengalami kondisi kritis/ *critical point* yang mengakibatkan densitas air menurun, menaikkan konstanta disosiasi, menurunkan konstanta dielektrik dan kemampuan shielding air terhadap ion sehingga kelarutan kation dan anion dalam larutan naik dan membentuk kondisi supersaturasi. Kondisi supersaturasi tersebut meningkatkan laju pembentukan dan pertumbuhan kristal sehingga terbentuk partikel dengan morfologi yang teratur dan homogen (Lalena, dkk. 2008). Sedangkan metode sonikasi tidak dilakukan pada wadah tertutup dan hanya memanfaatkan radiasi ultrasonik yang mempercepat reaksi antara padatan

dan larutan tanpa melalui keadaan supersaturasi sehingga partikel yang terbentuk memiliki morfologi yang tidak seragam dan *irrelugar* (Bang dan Suslick, 2010).



Gambar 4.7 Hasil morfologi SEM Zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal variasi waktu kristalisasi 2 jam (a, b, c, dan d) dan variasi waktu 4 jam (e, f, g dan h).



Gambar 4.8 Hasil morfologi SEM Zeolit NaX hasil sintesis metode sonikasi variasi waktu sonikasi 2 jam (a, b, c, dan d) dan variasi waktu 4 jam (e, f, g dan h).



BAB V

PENUTUP

5.1 Kesimpulan

Sintesis dengan metode hidrotermal lama waktu 2 jam menghasilkan zeolit NaX, dan campuran antara zeolit NaX dan sodalit pada waktu kristalisasi 4 jam, sedangkan sintesis menggunakan metode sonikasi menghasilkan zeolit NaX baik pada waktu kristalisasi 2 jam dan 4 jam. Analisa zeolit menggunakan FTIR menunjukkan adanya serapan dari zeolit tipe faujasit yang berbeda dari serapan kaolin dan metakaolin. Hasil analisa SEM menunjukkan zeolit yang terbentuk menggunakan metode hidrotermal menghasilkan morfologi yang lebih baik dibanding metode sonikasi yaitu berupa partikel kubus pada waktu kristalisasi 4 jam sedangkan metode sonikasi menghasilkan morfologi yang tidak beraturan baik pada waktu 2 jam maupun 4 jam.

5.2 Saran

Sintesis yang dilakukan menghasilkan zeolit NaX dengan pengotor sodalit dan morfologi yang *irregular*/tidak beraturan, sehingga diperlukan analisa lanjutan pada rasio komposisi reaktan, waktu kristalisasi dan suhu kristalisasi untuk menghasilkan zeolit NaX yang lebih murni dan memiliki morfologi yang baik.

DAFTAR PUSTAKA

- Ã, G. C. (2006). Zeolites upon heating : Factors governing their thermal stability and structural changes, *67*, 1973–1994.
- Abdullah, A. H., Zulkefli, N. N., Abd Aziz, A. S., dan Mat, R. (2016). Synthesis of zeolite Na-A from local kaolin for bioethanol purification. *Indian Journal of Science and Technology*, *9*(9).
- Ambroise, J., Murat, M., Pera, J., 1986. Investigations on synthetic binders obtained by middle-temperature thermal dissociation of clay minerals. *Silicates Industriels*. *7* (8), 99–107.
- Auerbach, M. Carrado, dan dutta, P. (2003). *Zeolite Science and Technology*. New york : Marcell Dekker. Inc.
- Ayele, L., Pérez-Pariente, J., Chebude, Y., dan Díaz, I. (2016). Conventional versus alkali fusion synthesis of zeolite A from low grade kaolin. *Applied Clay Science*, *132–133*, 485–490.
- Bang, J. H., & Suslick, K. S. (2010). Applications of ultrasound to the synthesis of nanostructured materials. *Advanced Materials*, *22*(10), 1039–1059.
- Belviso, C., Cavalcante, F., Lettino, A., dan Fiore, S. (2013). A and X-type zeolites synthesised from kaolinite at low temperature. *Applied Clay Science*, *80–81*, 162–168.
- Bondareva, G. V., Rat'ko, A. I., & Azarov, S. M. (2003). Hydrothermal synthesis of zeolite NaX on porous ceramic supports. *Inorganic Materials*, *39*(6), 605–609.
- Byrappa, K., & Yoshimura, M. (2001). *Handbook of Hydrothermal Technology, Technology for Crystal Growth and Materials Processing. Materials science and processing technology series*.
- Cahyawati, Melinda. 2017. *Skripsi*. Sintesis Dan Karakterisasi Zeolit Nay Dari Kaolin Dengan Variasi Suhu Kristalisasi Menggunakan Metode Hidrotermal. UIN Malang.
- Chandrasekhar, S., dan Pramada, P. N. (1999). Investigation on the synthesis of zeolite NaX from kerala kaolin. *Journal of Porous Materials*, *6*(4), 283–297.
- Chandrasekhar, Sathy, dan Pramada. 2004. *Applied Clay Science*. Kaolin-Based Zeolite Y, A Precursor For Cordierite Ceramics. Hal 187-198.
- Cheng, H., Liu, Q., Yang, J., Ma, S., dan Frost, R. L. (2012). The thermal behavior of kaolinite intercalation complexes-A review. *Thermochimica Acta*, *545*, 1–13.
- Cotton dan Wilkison. 1989. *Kimia Anorganik Dasar*. Terjemahan Sahati Sunarto dari Basic Inorganic Chemistry (1976). Jakarta: Universitas Indonesia Press.

- Cundy, Colin, dan Cox, Paul. 2005. *Microporous and mesoporous materials*. The hydrothermal synthesis of zeolites: Precursors, intermediates and reaction mechanism. No 82. Hal 1-78.
- Darmawan, rahmad. 2017. *Skripsi*. Sintesis dan karakterisasi zeolit NaA dari kaolin dan metakaolin sebagai adsorben logam tembaga, Besi dan timbal pada limbah logam laboratorium. UIN Malang.
- Ekosse, G.E. 2005. Fourier Transform Infrared Spectrophotometry and X-ray Diffractometry as Complementary Techniques in characterizing Clay size fraction of Kaolin. *Journal of Applied Science and Environmental Management*, 9(2): 43-48.
- Flaningen, M., Bekkum, H, E, and Jansen, J.C. 1991. *Introduction to Zeolite Science and Practice*. Amsterdam: Elsevier.
- Ghrib, Y., Frini-Srasra, N., dan Srasra, E. (2016). Synthesis of NaX and NaY Zeolites from Tunisian Kaolinite as Base Catalysts: An Investigation of Knoevenagel Condensation. *Journal of the Chinese Chemical Society*, 63(7), 601–610.
- Growth, C., Company, N. P., & Boffkovi, R. (1980). TRANSFORMATION OF ZEOLITE A INTO HYDROXYSODALITE I. An approach to the mechanism of transformation and its experimental evaluation B. SUBOTI~,D. ~KRTI~ and I. ~MIT, 50, 498–508.
- Hartati, H., Widati, A. A., Dewi, T. K., dan Prasetyoko, D. (2017). Direct Synthesis of Highly Crystalline ZSM-5 from Indonesian Kaolin. *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis*, 12(2), 251.
- Ibrahim, Ali bin Muhammad bin, 1991, Tafsir al-Khazin, Beirut: Dār al-Kutub alIlmiyyah, cet. I.
- Kasir, abi fida ismail bin umar. 2010. *Tafsir Ibnu Katsir Juz 4*. Bandung : Penerbit Sinar Baru Algensindo Bandung.
- Kementerian Energi Dan Sumber Daya Mineral Badan Geologi Pusat Sumber Daya Geologi. 2015. Executive Summary Pemutakhiran Data Dan Neraca Sumber Daya Mineral Status 2015.
- Kim, wantaee, dkk. 2010. Materials Transactions. Sonochemical Synthesis of Zeolite A from Metakaolinite in NaOH Solution. Vol. 51, No. 9 (2010) pp. 1694 to 1698.
- Kovo, A. S., Hernandez, O., dan Holmes, S. M. (2009). Synthesis and characterization of zeolite Y and ZSM-5 from Nigerian Ahoko Kaolin using a novel, lower temperature, metakaolinization technique. *Journal of Materials Chemistry*, 19(34), 6207–6212.
- Lalena, J. N., Cleary, D. A., Carpenter, E. E., & Dean, N. F. (n.d.). *INORGANIC MATERIALS SYNTHESIS AND FABRICATION*.
- Ma, Y., Yan, C., Alshameri, A., Qiu, X., Zhou, C., dan Li, D. (2014). Synthesis and characterization of 13X zeolite from low-grade natural kaolin.

Advanced Powder Technology, 25(2), 495–499.

- Mahally, Imam Jalaluddin dan Imam Jalaluddin As-suyutti. 2012. Tafsir Jalalain Berikut Asbab An-nujulnya, Jilid I Bandung, : Sinar Baru.
- Mohammed, Abdul Halim Abdul Karim. 2013. *Journal of Engineering*. The use of Prepared Zeolite Y from Iraqi kaolin for Fluid Catalytic Cracking of Vacuum Gas Oil. No. 10. Vol 19.
- Moneim, M. A., dan Ahmed, E. A. (2015). Synthesis of Faujasite from Egyptian Clays : Characterizations and Removal of Heavy Metals, (April), 68–76.
- Murray, H. H. (2000). Traditional and new applications for kaolin, smectite, and palygorskite: A general overview. *Applied Clay Science*, 17(5–6), 207–221.
- Nata, A. 2002. *Tafsir Ayat-ayat Pendidikan*, Terjemah Tafsir al-Ayah al-Tarbawiy. Jakarta: Raja Grafindo Persada.
- Ngoc, D. T., Pham, T. H., Hong Nguyen, K. D. (2013). Synthesis, characterization and application of nanozeolite NaX from Vietnamese kaolin. *Advances in Natural Sciences: Nanoscience and Nanotechnology*, 4(4), 45018.
- Palomo, J. G., & Puertas, F. (2018). *Materiales de Construcción*, Vol 64, No 314 (2014), 64(314), 1–12.
- Panek, R., Wdowin, M., & Franus, W. (2014). The Use of Scanning Electron Microscopy to Identify Zeolite Minerals, 45–50.
- Pranowo, D., Agus, A., Maryam, R., dan Setyabudi, F. (2017). Application of silica extracted from rice husk ash for the encapsulation of AFB 1 antibody as a matrix in immunoaffinity columns, 77–83.
- Qiang, Li, dkk. 2010. *Pet Sci*. Influence of synthesis parameters on the crystallinity and Si/Al ratio of NaY zeolite synthesized from kaolin. No 7. Hal 403-409.
- Ríos, C. A., Williams, C. D., dan Castellanos, O. M. (2012). Crystallization of low silica Na-A and Na-X zeolites from transformation of kaolin and obsidian by alkaline fusion. *Cristalización de Zeolitas Na-A Y Na-X Bajas En Sílice a Partir de La Transformación de Caolín Y Obsidiana Por Fusión Alcalina.*, 14(2), 125–137.
- Ríos, C. A., Williams, C. D., dan Fullen, M. A. (2009). Nucleation and growth history of zeolite LTA synthesized from kaolinite by two different methods. *Applied Clay Science*, 42(3–4), 446–454.
- Rodr, R., dan Pfei, H. (2013). Rafael Rodr í guez-Mosqueda and Heriberto Pfei ffer *, 2–11.

- Saikia, B.J. dan Parthasarathy, G. 2010. Fourier Transform Infrared Spectroscopic Characterization of Kaolinite from Assam and Meghalaya, Northeastern India. *Journal of Modern Physics*, 1: 206-210.
- Salahudeen, dan Ahmed, Nurudeen. 2016. *J Incl Phenom Macrocycl Chem*. Synthesis of hexagonal zeolite Y from Kankara kaolin using a split technique. DOI 10.1007/s10847-016-0686-0.
- Shihab, M.Q. 2009. *Tafsir Al-Misbah Pesan, Kesan dan Keserasian Al-Qur'an*. Jakarta: Lentera Hati.
- Socrates, G. 1994. *Infrared Spectroscopy*. Chicester: John Willey & Sons Ltd.
- Svehla. 1990. *Analisis Anorganik Kualitatif Makro dan Semimikro Edisi Kelima Bagian Satu*. Buku Text. Jakarta: PT. Kalman Media Pustaka.
- Tan, K. H. 1995. *Dasar-dasar Kimia Tanah*. Yogyakarta: Universitas Gadjah Mada.
- Thuadaij, P., dan Nuntiya, A. (2012). Effect of the SiO₂/Al₂O₃ ratio on the synthesis of Na-x zeolite from Mae Moh fly ash. *ScienceAsia*, 38(3), 295–300.
- Wajima, T., Yoshizuka, K., Hirai, T., dan Ikegami, Y. (2008). Synthesis of Zeolite X from Waste Sandstone Cake Using Alkali Fusion Method. *Materials Transactions*, 49(3), 612–618.
- Wang, J. Q., Huang, Y. X., Pan, Y., dan Mi, J. X. (2014). Hydrothermal synthesis of high purity zeolite A from natural kaolin without calcination. *Microporous and Mesoporous Materials*, 199, 50–56.
- Wang, Y., dan Lin, F. (2009). Synthesis of high capacity cation exchangers from a low-grade Chinese natural zeolite. *Journal of Hazardous Materials*, 166(2–3), 1014–1019.
- Wypych. F., 2004, “Clay surfaces: fundamentals and applications”, Wypych. F. and Satyanarayana, K.G. (ed.), Vol. 1, Academic Press, UK, p. 553.
- Zhang, X., Yang, S., Tang, D., dan Yang, R. (2015). Synthesis of zeolite NaX at 25 °C and 95 °C: Characterization, cobalt exchange and catalytic performance in epoxidation of styrene. *Materials Research Bulletin*, 70, 343–347.
- Zhou S X, Gao D W, Lv H J, dkk. 1981. *Natural Science Journal of Jilin University*. Preparation of high silica Y type zeolite from kaolin by direct conversion in media of alkali. 2: 111-118.

Lampiran 1 Diagram Alir

1. Preparasi Sampel

Kaolin

- sampel kaolin dicuci dengan aquades untuk menghilangkan tanah yang menutupi kaolin
- dihaluskan dan diayak menggunakan ayakan 200-230 mesh
- dicuci menggunakan asam klorida (HCl) 1 M dengan perbandingan kaolin/HCl 1 : 4 (b/v)
- diaduk menggunakan stirer selama 1 jam
- dicuci dan disaring dengan aquades hingga pH filtrat 7
- dikeringkan pada temperatur 100°C selama 1 jam
- dikarakterisasi dengan XRF, XRD, SEM, dan FTIR

Hasil

2. Sintesis Metakaolin

Kaolin

- diambil 4,29 g kaolin
- ditambah 8,58 g NaOH
- dicampur dan digerus selama 30 menit
- dipanaskan pada suhu 600°C selama 1 jam
- didinginkan pada suhu ruang
- digerus sampai halus
- dikarakterisasi dengan XRD, SEM, dan FTIR

Hasil

3. Sintesis Zeolit NaX metode hidrotermal

Metakaolin

- diambil 10,8 g metakaolin
- ditambah 0,10589 g Al_2O_3
- ditambah 32,4 mL H_2O
- didiamkan pada suhu ruang selama 10 hari
- dipanaskan menggunakan suhu 100°C selama 12 jam dan 24 jam pada reaktor hidrotermal
- disaring dan dicuci dengan aquades sampai pH 9 atau 10
- dikeringkan pada suhu 100°C selama 12 jam.
- dikarakterisasi dengan XRD, SEM, dan FTIR

Hasil

4. Sintesis Zeolit NaX metode sonikasi

Metakaolin

- diambil 10,8 g metakaolin
- ditambah 0,10589 g Al_2O_3
- ditambah 32,4 mL H_2O
- dimasukkan dalam vial HDPE
- menggunakan suhu 69°C selama 120 menit dan 240 menit dengan frekuensi gelombang 42 KHz dan daya 100 W
- disaring dan dicuci dengan Akuades sampai pH 9 atau 10
- dikeringkan pada suhu 100°C selama 12 jam.
- dikarakterisasi dengan XRD, SEM, dan FTIR

Hasil

Lampiran 2. Perhitungan

1. Rasio Molar Si/Al kaolin Blitar

$$\text{Rasio Si/Al} = 5,45$$

$$\text{Hasil XRF kaolin : Si} = 65,4 \%$$

$$\text{Al} = 12 \%$$

2. Sintesis Metakaolin

a. Massa kaolin yang ditambahkan

$$\text{SiO}_2 = 0,1 \text{ mol}$$

$$\text{Gram SiO}_2 = \text{mol} \times \text{Mr SiO}_2$$

$$= 0,1 \text{ mol} \times 60,082 \text{ gram/mol}$$

$$= 6,0082 \text{ gram}$$

$$\text{Gram Si} = \frac{\text{Ar Si}}{\text{Mr SiO}_2} = \frac{28,082}{60,082} \times 6,0082 \text{ gram} = 2,8082 \text{ gram}$$

$$\text{Kaolin yang diperlukan} = \frac{100 \%}{65,4 \%} \times 2,8082 \text{ gram} = 4,29 \text{ gram}$$

b. Massa NaOH yang ditambahkan

$$\text{NaOH/kaolin} = 2$$

$$\text{NaOH} = 2 \times 4,29 \text{ gram} = 8,58 \text{ gram}$$

$$\text{Mol NaOH} = 0,21 \text{ mol}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O} = 0,5 \times \text{mol NaOH} = 0,105 \text{ mol}$$

$$\text{Gram Na}_2\text{O} = 6,51 \text{ gram}$$

$$\text{Metakaolin} = \text{gram Na}_2\text{O} + \text{Kaolin} = 10,8 \text{ gram}$$

Jadi massa yang ditambahkan untuk :

Sintesis metakaolin :

1. Kaolin 4,29 gram

2. NaOH 8,58 gram

3. Sintesis Zeolit NaX

- a. Massa Si dan Al dalam 4,29 gram kaolin

$$\text{Berat Si} = \frac{65,4\%}{100\%} \times 4,29 \text{ gram} = 2,8 \text{ gram}$$

$$\text{Mol Si} = \frac{2,8 \text{ gram}}{\text{Ar}} = \frac{2,8 \text{ gram}}{28,082 \text{ gram/mol}} = 0,0997 \text{ mol}$$

$$\text{Berat Al} = \frac{12\%}{100\%} \times 4,29 \text{ gram} = 0,51 \text{ gram}$$

$$\text{Mol Al} = \frac{0,51 \text{ gram}}{\text{Ar}} = \frac{0,51 \text{ gram}}{26,982 \text{ gram/mol}} = 0,0189 \text{ mol}$$

- b. Rasio Si/Al yang diinginkan

$$\text{Rasio Si/Al} = 5$$

Mol Al yang dibutuhkan :

$$\frac{\text{Si}}{\text{Al}} = \frac{0,0997 \text{ mol}}{\text{mol Al}} = 5$$

$$\text{Mol Al} = 0,01994 \text{ mol}$$

$$\text{Berat Al yang dibutuhkan} : 0,01994 \text{ mol} \times 26,982 \frac{\text{gram}}{\text{mol}} = 0,538 \text{ gram}$$

- c. Al_2O_3 yang perlu ditambahkan

Berat Al yang dibutuhkan – Berat Al dalam kaolin

$$0,538 \text{ gram} - 0,51 \text{ gram} = 0,028 \text{ gram}$$

$$\text{Massa Al}_2\text{O}_3 = \frac{\text{Mr Al}_2\text{O}_3}{\text{Ar Al}} \times 0,028 \text{ gram}$$

$$\text{Massa Al}_2\text{O}_3 = \frac{101,964 \text{ gram/mol}}{53,96 \text{ gram/mol}} \times 0,028 \text{ gram}$$

$$\text{Massa Al}_2\text{O}_3 = 0,0529 \text{ gram}$$

- d. Na_2O yang diperlukan

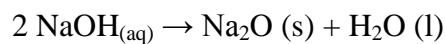
$$\frac{\text{Na}_2\text{O}}{\text{SiO}_2} = 6/10 = 0,6$$

$$\text{Mol SiO}_2 = 0,1 \text{ mol}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O} = 0,6 \times 0,1 \text{ mol} = 0,06 \text{ mol}$$

$$\text{Gram Na}_2\text{O} = 0,06 \text{ mol} \times 62 \text{ gram/mol} = 3,72 \text{ gram}$$

e. NaOH yang ditambahkan



$$0,06 \text{ mol Na}_2\text{O} = 0,12 \text{ NaOH}$$

$$0,12 \text{ mol} = \frac{\text{gram}}{\text{Mr}}$$

$$\text{Massa NaOH} = 0,12 \text{ mol} \times 40 \frac{\text{gram}}{\text{mol}}$$

$$\text{Massa NaOH} = 4,8 \text{ gram}$$

Misal NaOH : 99 %

$$\frac{100 \%}{99 \%} \times 4,8 \text{ gram} = 4,848 \text{ gram}$$

f. H₂O yang ditambahkan

$$\frac{\text{H}_2\text{O}}{\text{SiO}_2} = 180/10 = 18$$

$$\text{Mol SiO}_2 = 0,1 \text{ Mol}$$

$$\text{Mol H}_2\text{O} = 0,1 \text{ mol} \times 18 = 1,8 \text{ mol}$$

$$\text{Massa H}_2\text{O yang dibutuhkan} = 1,8 \text{ mol} \times 18 \text{ gr/mol} = 32,4 \text{ gram} = 32,4 \text{ mL}$$

$$\text{Massa air dalam padatan Al}_2\text{O}_3 = \frac{1\%}{100\%} \times 0,0529 \text{ gram} = 0,000529 \text{ gram}$$

Jadi massa H₂O yang ditambahkan :

$$54 \text{ gram} - 0,000529 \text{ gram} = 53,999 \text{ gram}$$

Sintesis zeolit NaX

1. Al₂O₃ 0,0529 gram
2. Metakaolin 10,8 gram
3. H₂O 54 mL

Lampiran 3. Pembuatan Larutan

1. Pembuatan Larutan HCl 1 M

Larutan HCl 1 M (BM = 35,5 g/mol) dibuat dengan cara mengencerkan larutan HCl pekat 37% dalam labu ukur 100 mL. Perhitungan pengenceran adalah sebagai berikut:

Konsentrasi HCl dalam Molar :

$$\text{HCl } 37\% \left(\frac{b}{b}\right) = \frac{37 \text{ g HCl}}{100 \text{ g Larutan}}$$

$$\rho = 1,19 \frac{\text{g}}{\text{mL}}$$

$$\frac{100 \text{ g}}{1,19 \text{ g}} = \frac{x}{1 \text{ mL}}$$

$$100 \text{ gram} = 1,19 \frac{\text{gram}}{\text{mL}} \times X$$

$$X = \frac{100 \text{ g}}{1,19 \frac{\text{g}}{\text{mL}}} = 84,03 \text{ mL} = 0,08403 \text{ L}$$

$$M = \frac{n}{v}$$

$$n = \frac{\text{gram}}{M_r} = \frac{37 \text{ gram}}{36,5 \frac{\text{gram}}{\text{mol}}} = 1,01 \text{ mol}$$

$$M = \frac{1,01 \text{ mol}}{0,08403 \text{ L}} = 12,063 \text{ M}$$

$$\text{Pengenceran HCl: } M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$$

$$12 \text{ M} \times V_1 = 1 \text{ M} \times 100 \text{ mL}$$

$$V_1 = 8,3 \text{ mL}$$

Untuk membuat larutan HCl 1 M sebanyak 100 mL maka diambil 8,3 mL larutan HCl pekat 37% dan dimasukkan dalam Beaker glass dengan akuades dimasukkan terlebih dahulu. Setelah HCl ditambahkan, kemudian dipindahkan kedalam labu ukur 100 mL dan ditambahkan lagi akuades hingga 100 mL.

Lampiran 4. Data Karakterisasi XRF Kaolin

1. Hasil karakterisasi XRF kaolin alam Blitar

2017 12:06:00

Sample results

Pa

Sample ident
E 1135 (Kaolin)

Application	<Standardless>
Sequence	1 of 1
Measurement time	29-dec-2017 11:35:59
Position	1

Compound	Al	Si	P	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Yb
Conc	14	65,7	3,1	6,18	5,41	3,01	0,11	0,14	0,19	2,23	0,087	0,071	0,07
Unit	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%

2. Hasil karakterisasi XRF kaolin hasil pencucian dengan HCl 1M

2017 13:36:43

Sample results

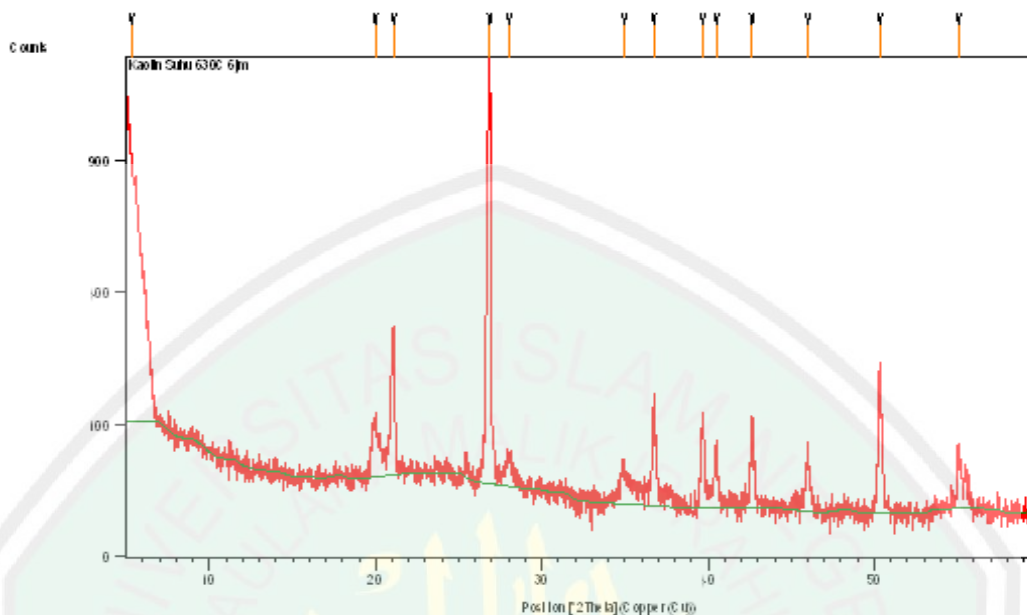
Sample ident
E 1136 (Kaolin purifikasi)

Application	<Standardless>
Sequence	1 of 1
Measurement time	29-dec-2017 11:37:59
Position	2

Compound	Al	Si	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Yb
Conc	9,6	76,1	6,44	1,84	3,19	0,091	0,05	0,20	2,27	0,03	0,093	0,06
Unit	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%

Lampiran 5. Data Karakterisasi XRD

1. Hasil XRD kaolin alam Blitar

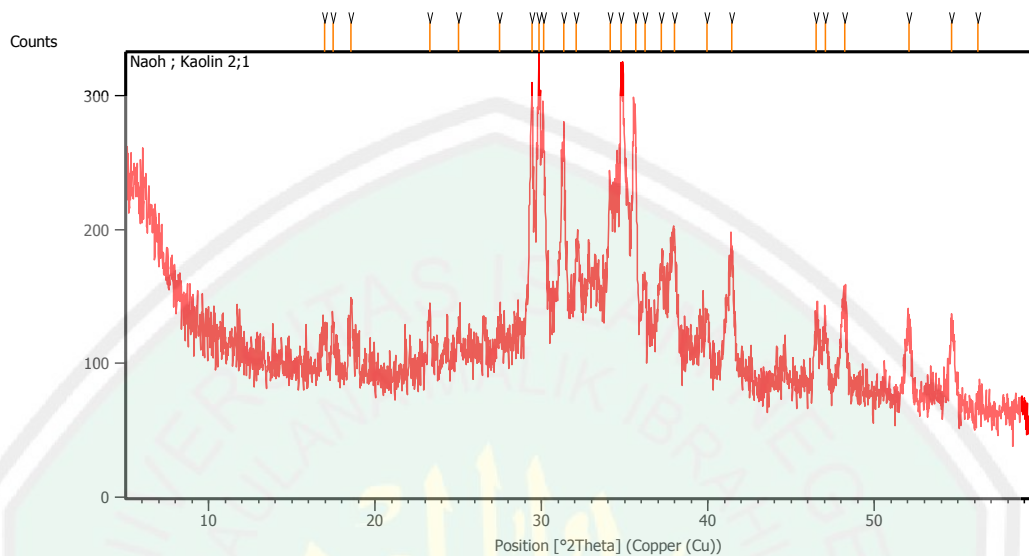


Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.9902	140.08	0.8029	14.75467	3.66
8.8532	43.91	0.6691	9.98862	1.15
17.7955	16.19	0.4015	4.98435	0.42
19.8860	124.23	0.1673	4.46484	3.25
20.8845	740.66	0.1506	4.25358	19.36
24.1264	19.93	0.5353	3.68886	0.52
26.6594	3826.02	0.1840	3.34385	100.00
27.9053	61.52	0.2676	3.19732	1.61
30.1077	14.59	0.5353	2.96826	0.38
35.1342	112.81	0.2342	2.55427	2.95
36.4985	305.28	0.1004	2.46186	7.98
37.8090	30.90	0.4015	2.37950	0.81
39.4293	269.86	0.1020	2.28348	7.05
39.5525	311.64	0.0669	2.27853	8.15
40.3153	148.81	0.1004	2.23717	3.89
42.4304	215.33	0.1632	2.12865	5.63
42.6150	148.27	0.1020	2.12512	3.88
45.7823	160.13	0.1428	1.98030	4.19
48.0499	13.27	0.6528	1.89200	0.35
50.1012	491.46	0.0816	1.81924	12.85
50.2411	529.67	0.0612	1.81450	13.84
54.8195	145.50	0.2040	1.67329	3.80
54.9977	144.80	0.1224	1.67243	3.78
57.2840	13.04	0.4896	1.60701	0.34

2. Hasil XRD NaOH/kaolin rasio 2 (600 °C selama 1 jam)

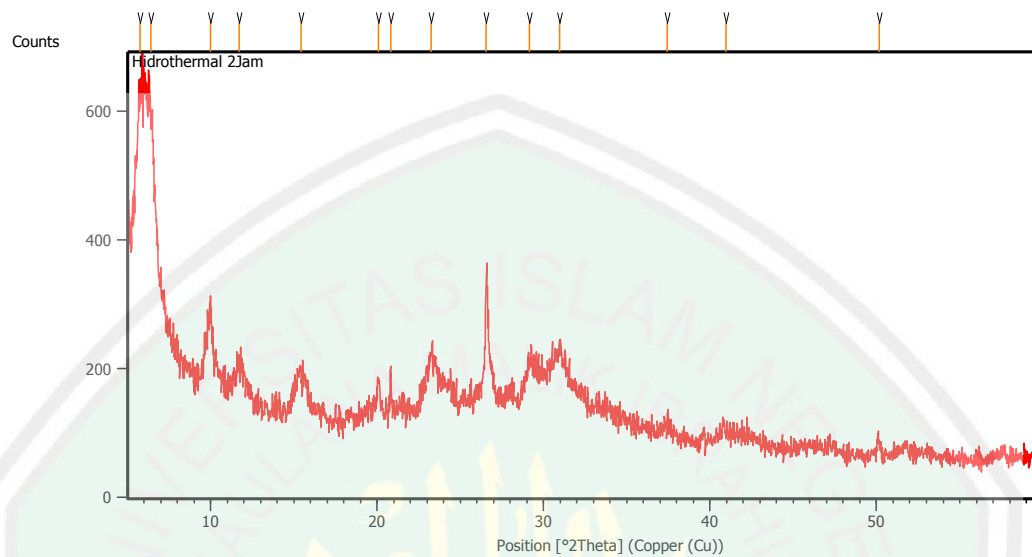
Graphics



Peak List: (Bookmark 3)

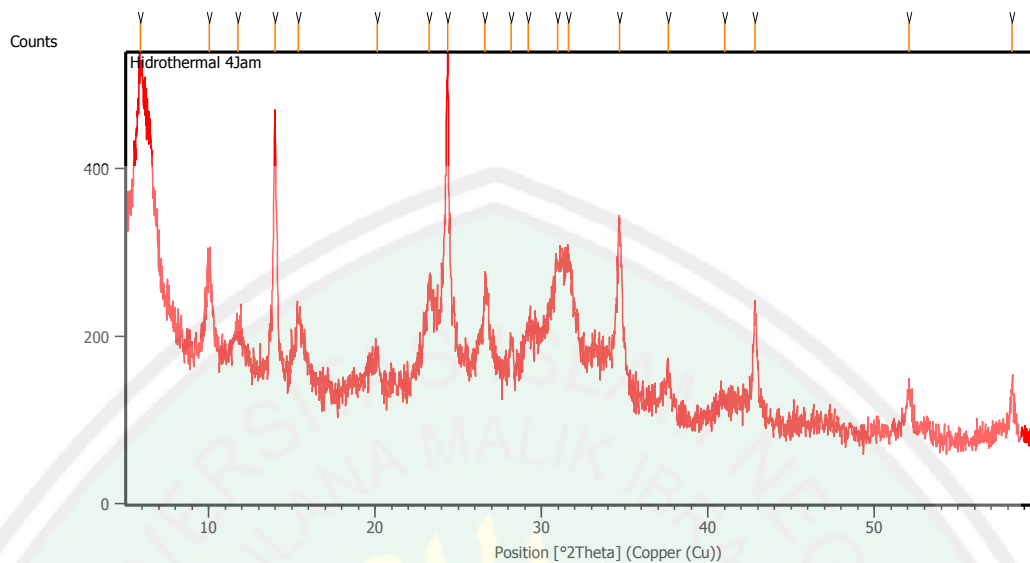
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
16.9630	26.09	0.3346	5.22705	11.36
17.4497	35.53	0.2007	5.08235	15.48
18.5309	42.52	0.2676	4.78817	18.52
23.2661	41.51	0.2007	3.82328	18.08
25.0211	34.37	0.2007	3.55894	14.97
27.4626	35.11	0.4015	3.24785	15.29
29.4356	200.59	0.1004	3.03449	87.37
29.8491	211.50	0.1673	2.99339	92.12
30.1272	173.44	0.1673	2.96639	75.54
31.3334	179.79	0.1004	2.85489	78.31
32.0860	99.17	0.2342	2.78963	43.19
34.1403	136.02	0.2676	2.62633	59.24
34.7693	229.60	0.1338	2.58024	100.00
35.6382	191.23	0.2007	2.51930	83.29
36.2144	75.07	0.1673	2.48052	32.70
37.1754	83.68	0.2676	2.41858	36.45
37.9636	109.68	0.3346	2.37016	47.77
39.9279	50.38	0.2007	2.25797	21.94
41.4436	96.55	0.2342	2.17883	42.05
46.4881	40.83	0.2007	1.95348	17.78
47.0409	49.35	0.2676	1.93180	21.49
48.1924	69.18	0.2676	1.88830	30.13
52.0584	52.23	0.3346	1.75680	22.75
54.6369	64.11	0.2007	1.67984	27.92
56.2206	10.52	0.2676	1.63622	4.58

3. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal pada pemanasan 2 jam



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.7450	400.13	0.3346	15.38376	100.00
6.4133	372.20	0.3346	13.78210	93.02
9.9711	116.69	0.4015	8.87109	29.16
11.7035	50.14	0.3346	7.56155	12.53
15.4496	58.84	0.6691	5.73549	14.71
20.0849	54.20	0.1338	4.42107	13.55
20.8062	70.82	0.0502	4.26942	17.70
23.2561	81.98	0.4684	3.82491	20.49
26.5535	182.51	0.0836	3.35694	45.61
29.1618	60.91	0.3346	3.06235	15.22
30.9676	78.55	0.5353	2.88778	19.63
37.4024	16.89	0.6691	2.40442	4.22
40.9428	15.46	0.8029	2.20432	3.86
50.1520	20.48	0.2007	1.81902	5.12

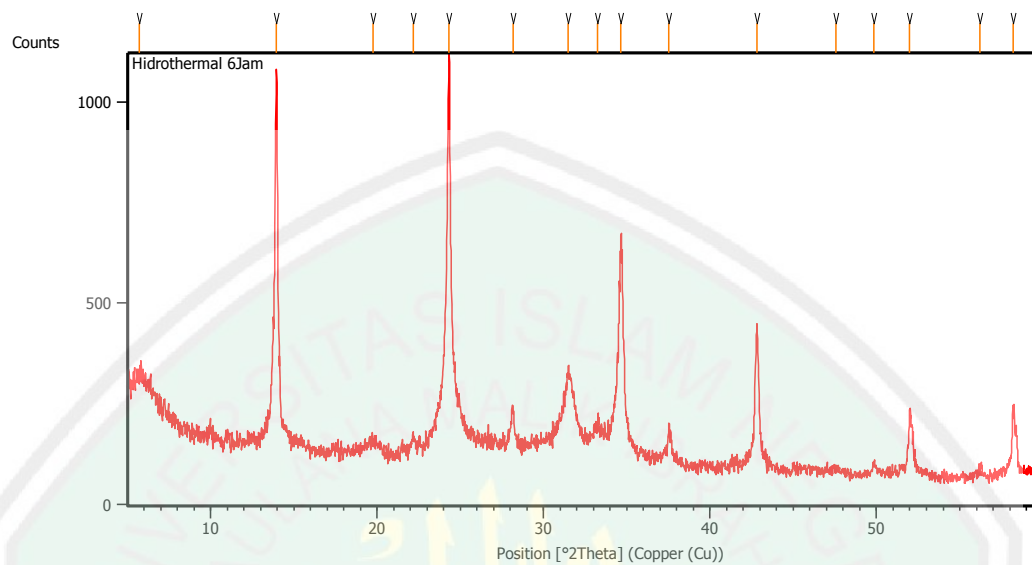
4. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal pada pemanasan 4 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.8836	278.54	0.2676	15.02165	79.67
10.0307	106.88	0.3346	8.81851	30.57
11.7763	44.02	0.5353	7.51497	12.59
13.9804	311.37	0.1171	6.33474	89.06
15.3774	81.08	0.2676	5.76226	23.19
20.1137	39.12	0.2676	4.41482	11.19
23.2458	113.60	0.2007	3.82657	32.49
24.3693	349.61	0.1338	3.65264	100.00
26.6099	102.49	0.1673	3.34995	29.31
28.1771	32.66	0.2007	3.16709	9.34
29.1898	43.25	0.5353	3.05947	12.37
30.9688	113.58	0.5353	2.88767	32.49
31.6290	115.84	0.2676	2.82888	33.13
34.6572	194.43	0.1673	2.58833	55.61
37.6308	42.42	0.2676	2.39035	12.13
40.9894	26.42	0.8029	2.20192	7.56
42.8249	139.62	0.2007	2.11170	39.94
52.0720	49.21	0.2676	1.75638	14.07
58.2613	58.47	0.1673	1.58367	16.72

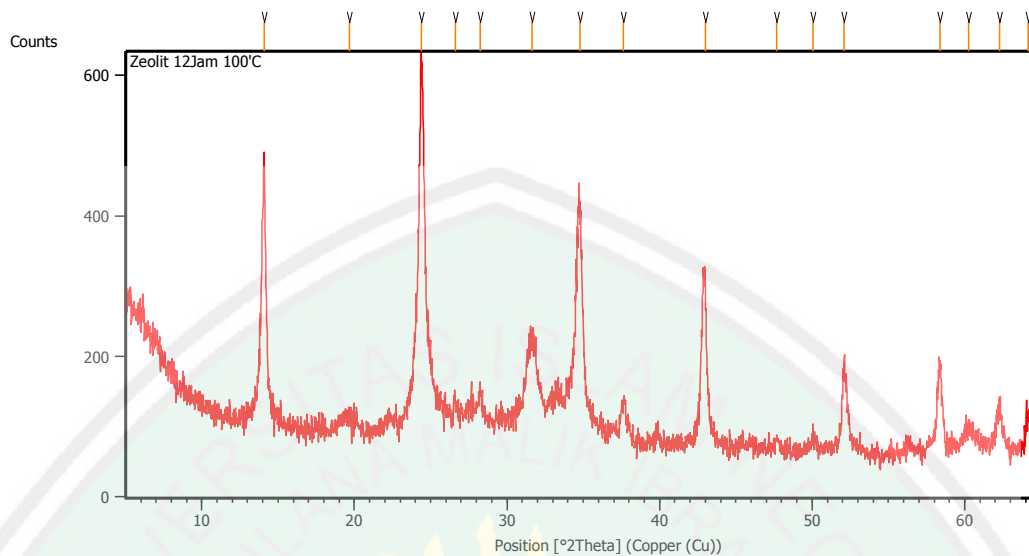
5. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal pada pemanasan 6 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.7225	76.84	0.6691	15.44428	7.95
13.9536	921.19	0.1338	6.34684	95.36
19.7563	28.16	0.8029	4.49386	2.92
22.1595	30.04	0.2007	4.01163	3.11
24.3163	966.03	0.1171	3.66049	100.00
28.1538	88.47	0.1338	3.16966	9.16
31.4723	182.80	0.2007	2.84261	18.92
33.2369	60.09	0.4015	2.69562	6.22
34.6349	533.12	0.1338	2.58995	55.19
37.5210	84.07	0.2007	2.39709	8.70
42.8043	342.62	0.0836	2.11267	35.47
47.5467	9.14	0.8029	1.91243	0.95
49.8581	27.07	0.2007	1.82905	2.80
52.0000	165.78	0.0836	1.75864	17.16
56.2193	20.94	0.4015	1.63625	2.17
58.2169	161.45	0.1338	1.58478	16.71

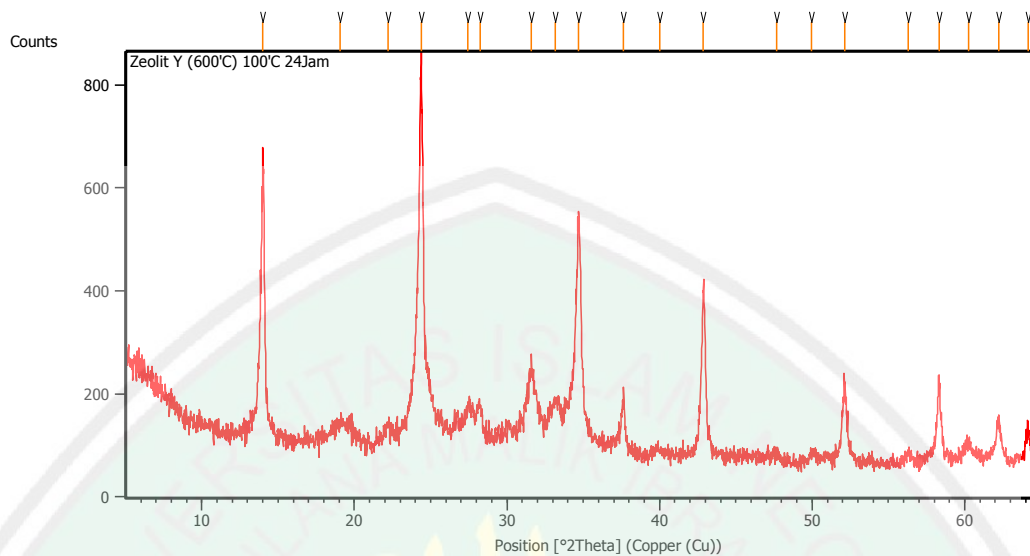
6. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal pada pemanasan 12 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
14.0708	381.40	0.0836	6.29428	72.53
19.6597	18.63	0.8029	4.51572	3.54
24.4005	525.83	0.3680	3.64805	100.00
26.5959	33.44	0.2007	3.35169	6.36
28.2633	43.16	0.2676	3.15762	8.21
31.6303	104.65	0.4684	2.82877	19.90
34.7637	304.85	0.3346	2.58064	57.97
37.6428	47.31	0.3346	2.38962	9.00
42.9916	223.50	0.3680	2.10390	42.50
47.6857	10.48	0.8029	1.90718	1.99
50.0714	16.91	0.4015	1.82176	3.22
52.0842	125.14	0.2676	1.75599	23.80
58.3765	123.35	0.3346	1.58082	23.46
60.2569	31.51	0.6691	1.53591	5.99
62.2914	67.71	0.1673	1.49055	12.88
64.1505	46.96	0.2676	1.45177	8.93

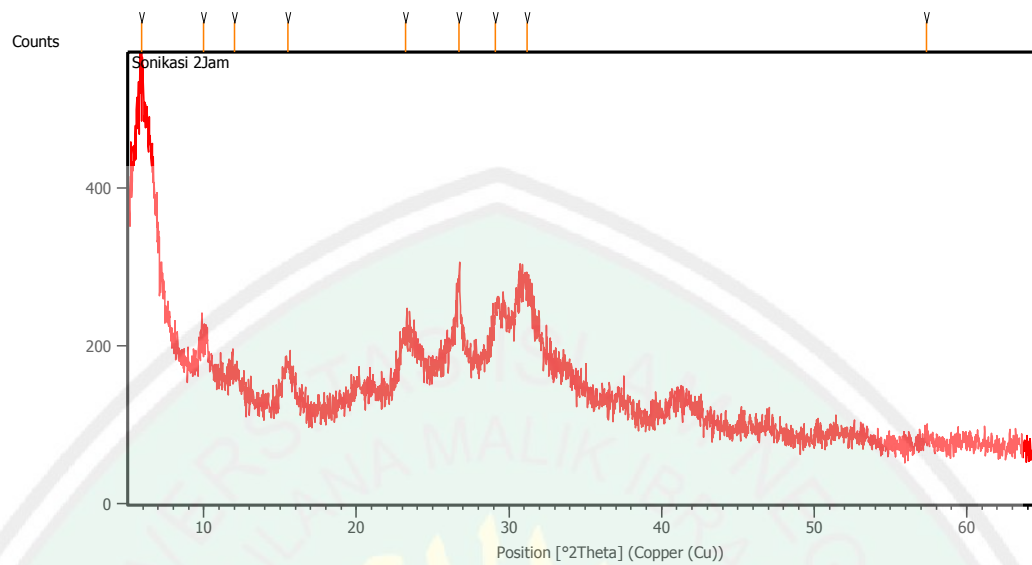
7. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode hidrotermal pada pemanasan 24 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
14.0134	516.34	0.1171	6.31993	73.46
19.0824	31.87	0.8029	4.65102	4.53
22.1897	25.36	0.4015	4.00625	3.61
24.3674	702.86	0.1338	3.65293	100.00
27.4571	54.65	0.4015	3.24848	7.77
28.2272	59.37	0.2676	3.16159	8.45
31.5998	123.72	0.4684	2.83143	17.60
33.1801	74.97	0.4015	2.70010	10.67
34.6973	435.56	0.2007	2.58542	61.97
37.6437	101.87	0.2007	2.38957	14.49
39.9996	11.26	0.8029	2.25409	1.60
42.8727	323.22	0.1171	2.10946	45.99
47.6687	11.43	0.6691	1.90782	1.63
49.9716	19.78	0.4015	1.82516	2.81
52.1511	141.47	0.2342	1.75390	20.13
56.3142	20.71	0.4015	1.63372	2.95
58.3049	166.04	0.1338	1.58259	23.62
60.2380	35.95	0.4684	1.53635	5.12
62.2368	91.63	0.2007	1.49173	13.04
64.1562	76.05	0.2007	1.45166	10.82

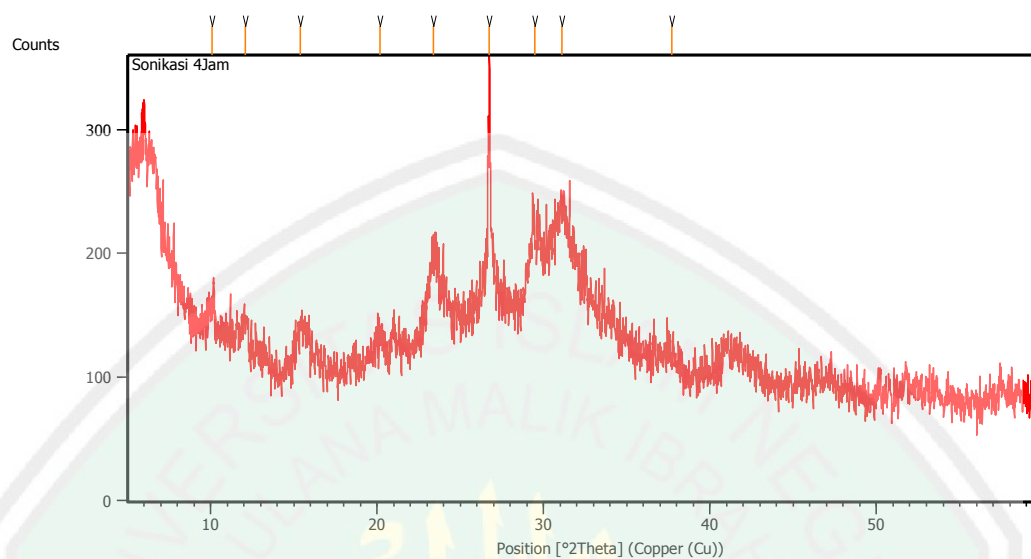
8. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode sonikasi pada pemanasan 2 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [$^{\circ}2\text{Th.}$]	Height [cts]	FWHM Left [$^{\circ}2\text{Th.}$]	d-spacing [\AA]	Rel. Int. [%]
5.9248	286.56	0.3346	14.91734	100.00
10.0062	43.15	0.5353	8.84000	15.06
12.0103	23.98	0.8029	7.36906	8.37
15.4979	56.17	0.4015	5.71774	19.60
23.2131	58.30	0.8029	3.83188	20.34
26.7164	104.52	0.1338	3.33683	36.47
29.1270	61.08	0.6691	3.06593	21.32
31.2110	92.89	0.8029	2.86581	32.41
57.3626	9.22	0.8029	1.60633	3.22

9. Hasil XRD zeolit NaX hasil sintesis metode sonikasi pada pemanasan 4 jam



Peak List: (Bookmark 3)

Pos. [$^{\circ}2\text{Th.}$]	Height [cts]	FWHM Left [$^{\circ}2\text{Th.}$]	d-spacing [\AA]	Rel. Int. [%]
10.0718	22.09	0.4015	8.78260	13.23
12.0663	24.46	0.4015	7.33498	14.64
15.3836	36.04	0.6691	5.75995	21.57
20.1750	20.59	0.4684	4.40153	12.33
23.3822	62.25	0.5353	3.80456	37.27
26.7205	167.04	0.1338	3.33634	100.00
29.4698	56.22	0.5353	3.03104	33.66
31.1143	71.94	0.5353	2.87450	43.07
37.6926	14.53	0.8029	2.38658	8.70

Lampiran 6. Data Standar XRD Zeolit

1. Zeolit NaX

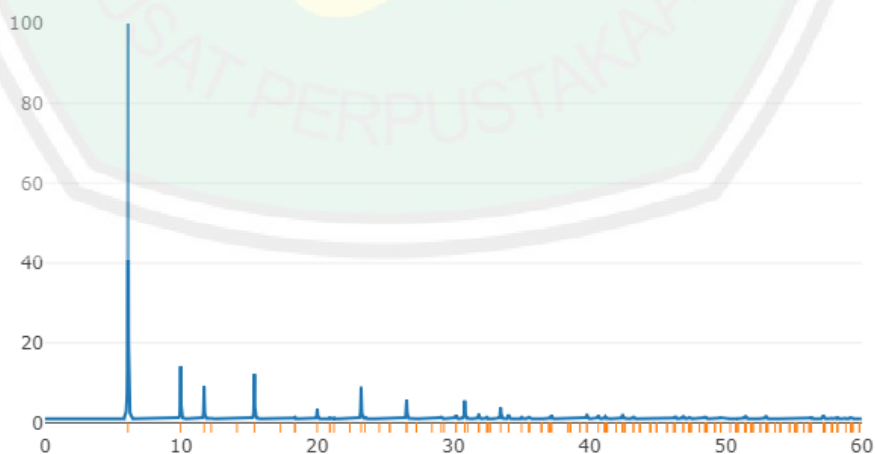
Crystal data:

Material Name: Na-X, Dehydrated , modified
Composition: (enter modified composition)
Space group: Fd-3 Z **Setting 2**
Cell parameters: $a = 25.099 \text{ \AA}$ $b = 25.099 \text{ \AA}$ $c = 25.099 \text{ \AA}$
 $\alpha = 90^\circ$ $\beta = 90^\circ$ $\gamma = 90^\circ$

Atomic Coordinates:

Atom	Form Factor	x	y	z	PP	B(iso)
Na1	Na	0	0	0	0.18	3.18
Na2	Na	0.0454	0.0454	0.0454	0.66	0.87
Na3	Na	0.056	0.056	0.056	0.25	1.26
Na4	Na	0.2292	0.2292	0.2292	0.97	2.53
Na5	Na	0.423	0.326	0.158	0.11	2.32
Na6	Na	0.432	0.28	0.164	0.11	1.68
Na61	Na	0.465	0.317	0.158	0.09	1.68
Si1	Si	-0.05381	0.12565	0.03508	1	1.41
Si2	Si	-0.05524	0.03639	0.12418	0.08	1.46
Al2	Al	-0.05524	0.03639	0.12418	0.92	1.46
O1	O	-0.1099	0.0003	0.1056	1	2.47
O2	O	-0.0011	-0.0028	0.1416	1	2.45
O3	O	-0.0346	0.0758	0.0711	1	2.61
O4	O	-0.0693	0.0726	0.18	1	2.37

Xray Powder Pattern generated for Na-X, Dehydrated , modified



2. Zeolit Sodalit SOD

Sodalite Octahydrate

CHEMICAL COMPOSITION: $[\text{Na}_6(\text{H}_2\text{O})_8] [\text{Si}_6\text{Al}_6\text{O}_{24}]$

REFINED COMPOSITION: $[\text{Na}_6(\text{H}_2\text{O})_8] [\text{Si}_6\text{Al}_6\text{O}_{24}]$

CRYSTAL DATA: $P\bar{4}3n$ (No. 218)

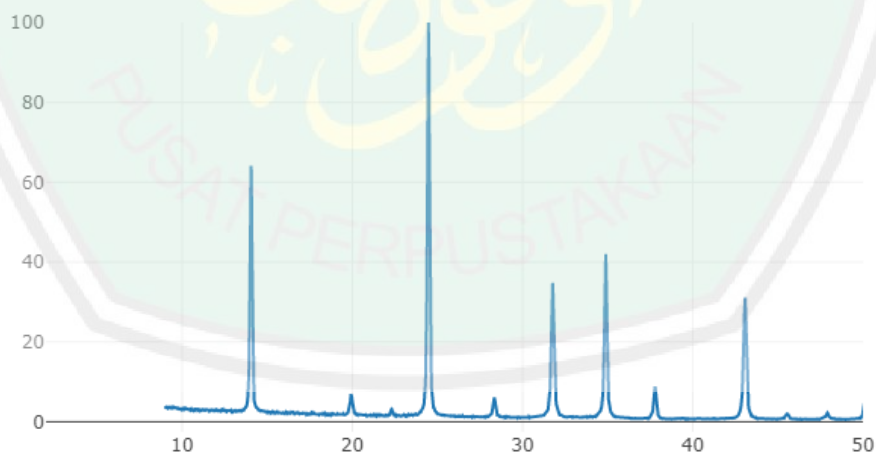
$a = 8.848 \text{ \AA}$ $b = 8.848 \text{ \AA}$ $c = 8.848 \text{ \AA}$

$\alpha = 90^\circ$ $\beta = 90^\circ$ $\gamma = 90^\circ$

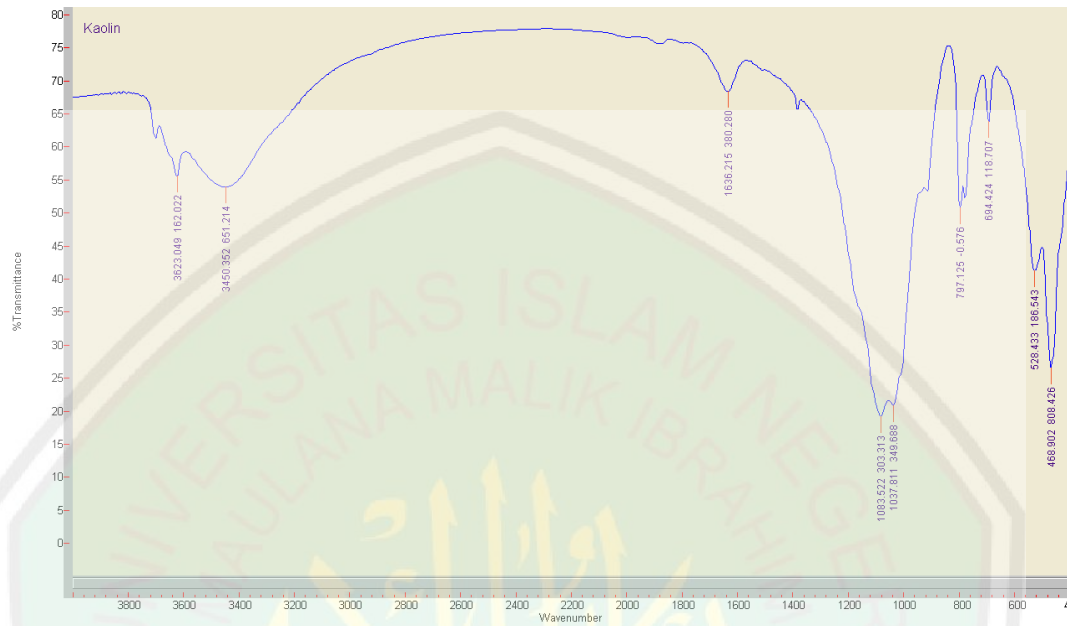
X-ray Rietveld refinement, $R_{\text{wp}} = 0.091$, $R_{\text{F}} = 0.047$

REFERENCE: J. Felsche, S. Luger and Ch. Baerlocher,
Zeolites **6** 367–372 (1986).

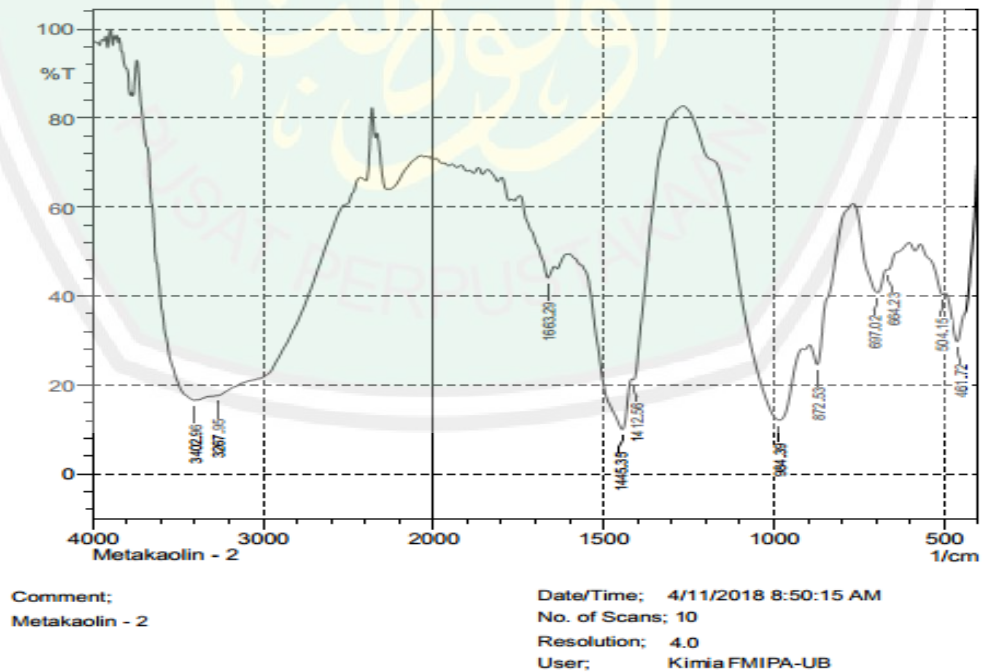
h	k	l	2θ	d	M	I_{rel}	h	k	l	2θ	d	M	I_{rel}	h	k	l	2θ	d	M	I_{rel}
1	1	0	14.16	6.256	12	61.8	3	1	0	31.99	2.798	24	94.6	4	1	1	43.39	2.085	24	19.6
2	0	0	20.07	4.424	6	15.1	2	2	2	35.13	2.554	8	75.7	4	2	0	45.86	1.978	24	4.9
2	1	0	22.47	3.957	24	3.6	3	2	1	38.05	2.365	48	13.9	4	2	1	47.06	1.931	48	0.1
2	1	1	24.65	3.612	24	100.0	4	0	0	40.79	2.212	6	2.7	3	3	2	48.24	1.886	24	7.5
2	2	0	28.53	3.128	12	19.6	3	3	0	43.39	2.085	12	15.8							



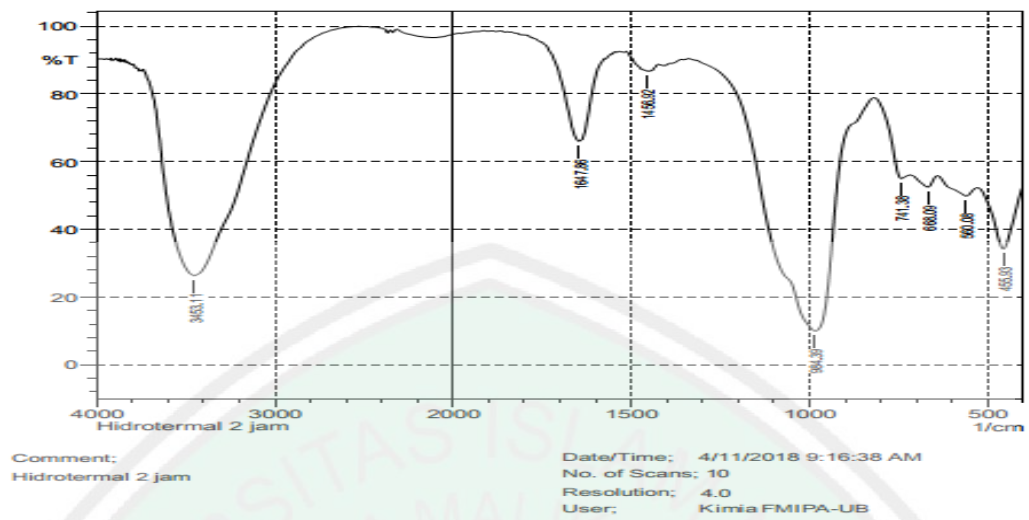
Lampiran 7. Data Spektra Inframerah



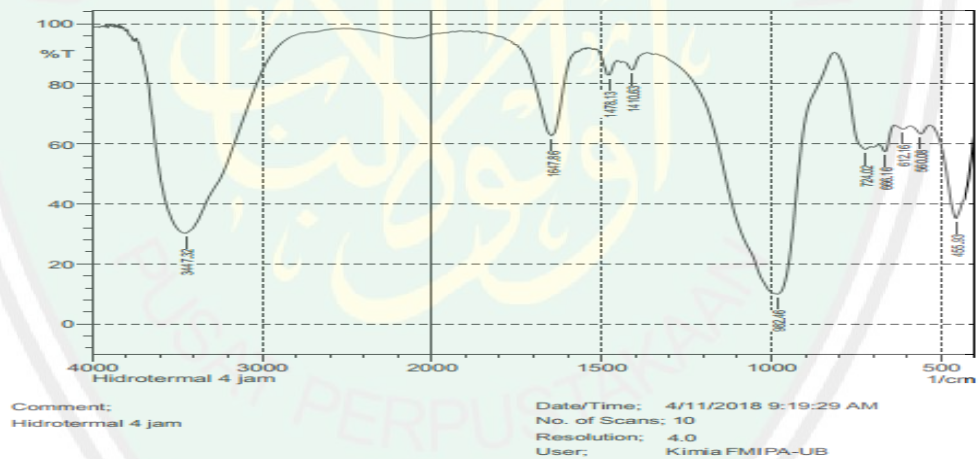
Gambar L.7.1 Spektrum inframerah kaolin alam Blitar



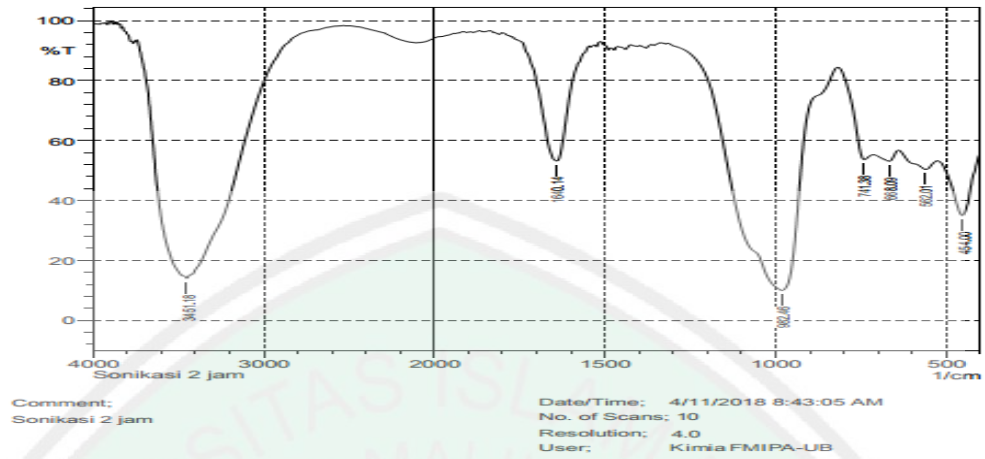
Gambar L.7.2 Spektrum inframerah NaOH/kaolin rasio 2 (600 °C)



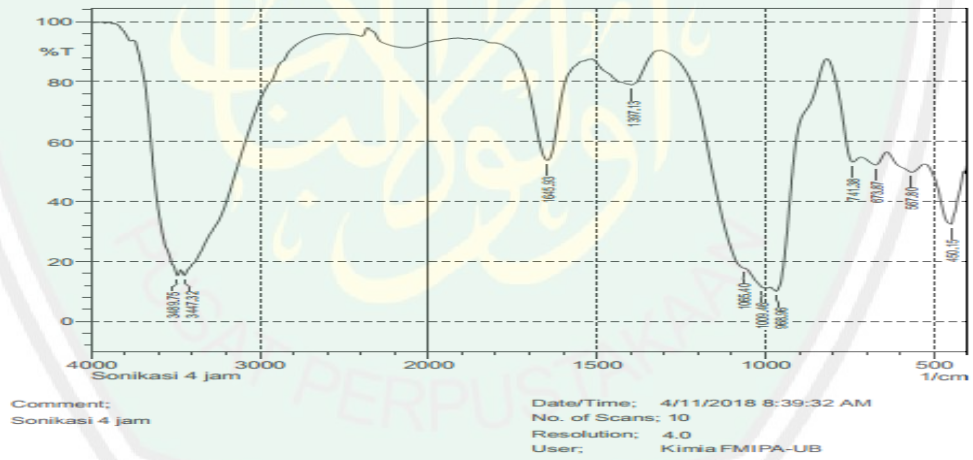
Gambar L.7.3. Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 2 jam



Gambar L.7.4. Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam

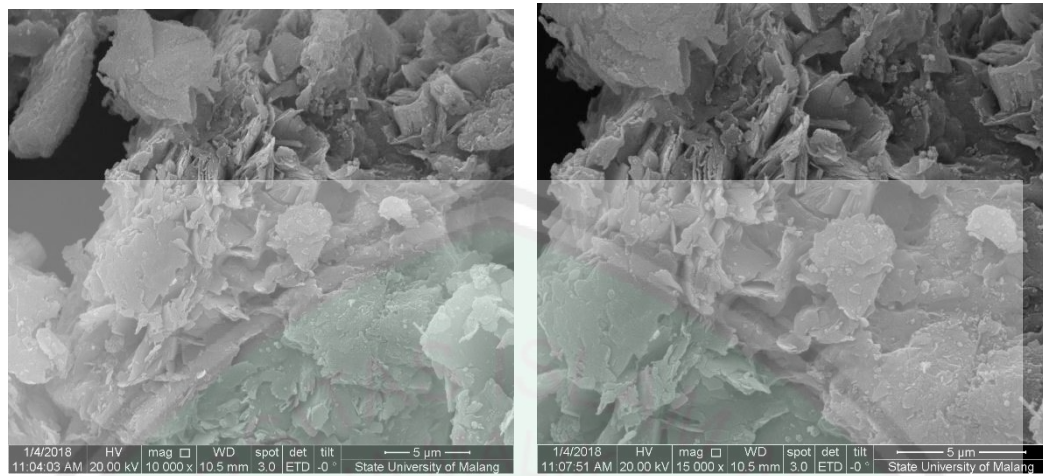


Gambar L.7.5. Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 2 jam



Gambar L.7.6. Spektrum inframerah zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 4 jam

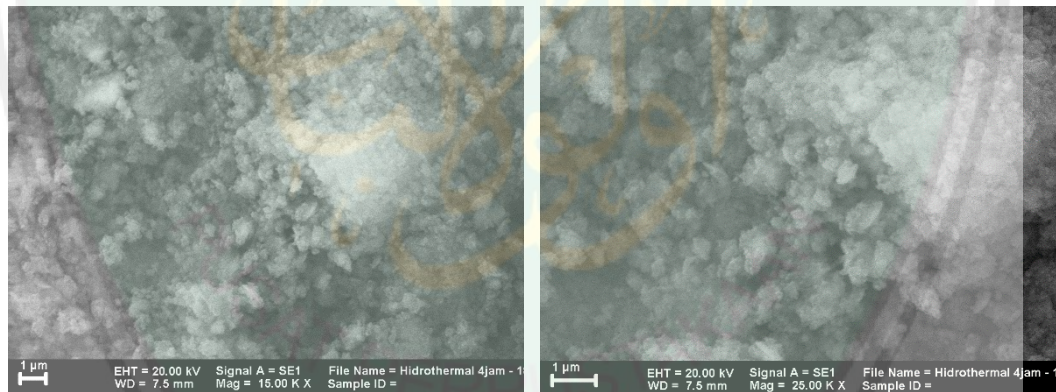
Lampiran 8. Data Karakterisasi SEM



(a)

(b)

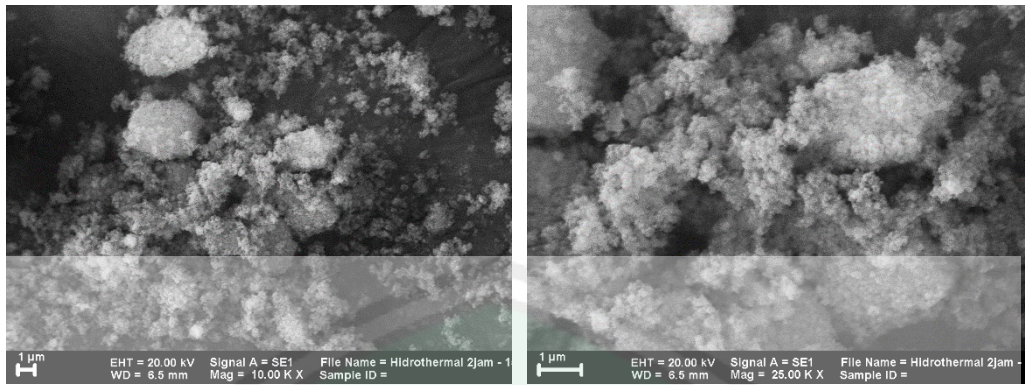
Gambar L.8.1 Hasil SEM kaolin alam Blitar dengan perbesaran (a) 10.000x dan (b) 15.000x



(c)

(d)

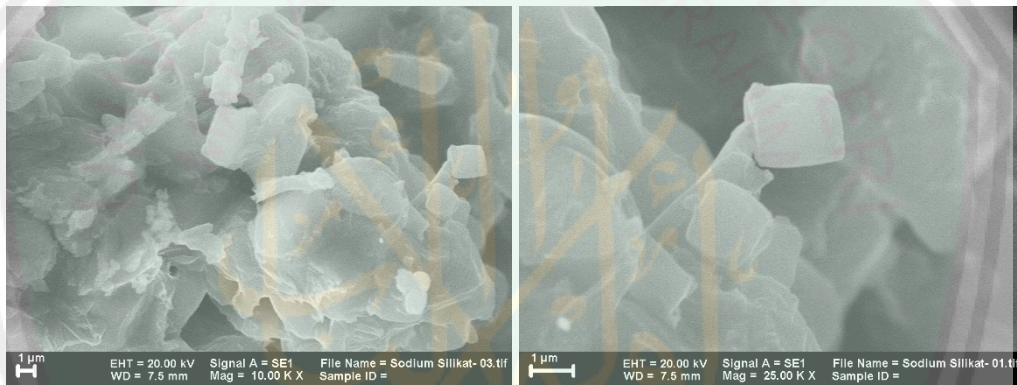
Gambar L.8.2 Hasil SEM metakaolin dengan perbesaran (c) 15.000x dan (d) 25.000x



(e)

(f)

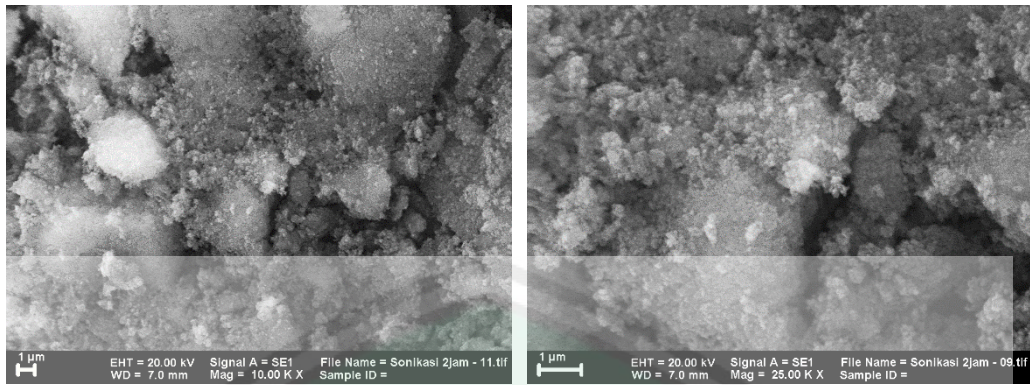
Gambar L.8.3 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x



(g)

(h)

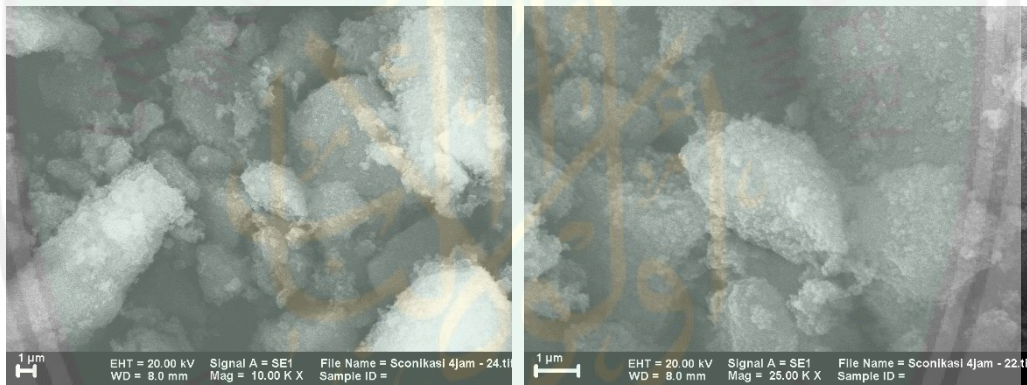
Gambar L.8.4 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode hidrotermal pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x



(i)

(j)

Gambar L.8.5 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 2 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x



Gambar L.8.6 Hasil SEM zeolit hasil sintesis metode sonikasi pemanasan 4 jam dengan perbesaran (i) 10.000x dan (j) 25.000x

Lampiran 9. Perhitungan dan Analisis Data

1. Analisis Ukuran Kristalit Zeolit NaY Hasil Sintesis

Berikut ini contoh pengukuran ukuran kristalit dengan menggunakan persamaan Debye-Scherrer (Persamaan 9.1):

$$D = (K \lambda) / (\beta \cos \theta) \dots \dots \dots (9.1)$$

dengan :

D = Ukuran kristal (nm)

K = konstanta (0,9)

λ = panjang gelombang radiasi (nm)

β = integrasi luas puncak refleksi (FWHM, radian)

θ = sudut difraksi dengan intensitas tertinggi

Jika nilai $\lambda = 0,154060$ nm; $2\theta = 26,56$; $\theta = 13,28$; $\cos \theta = 0,75599$; dan $\text{FWHM} = 0,33$

Maka didapatkan,

Nilai β :

$$\beta = \frac{0,33}{180} \times 3,14 = 0,0057$$

Nilai D (ukuran kristal) :

$$D = \frac{0,9 \times 0,154060 \text{ nm}}{0,0057 \times 0,75599} = 318 \text{ \AA}$$

Perhitungan ukuran kristalit zeolit NaY hasil sintesis ditunjukkan pada

Tabel 8.1.

Tabel 8.1. Data analisis ukuran kristal zeolit hasil sintesis

Zeolit	2 Theta (°)	Ukuran Kristal (nm)
Hidrotermal 2 jam	26,67	31,8
Hidrotermal 4 jam	26,67	27,9
Sonikasi 2 jam	26,67	36,5
Sonikasi 4 jam	26,67	47