



Sintesis Zeolit Nap Melalui Metode Sintesis Zeolit Nax Dan Efek Ultrasonik Sebagai Aktivator

Lara Triyuni*, Universitas Negeri Padang, Indonesia
Miftahul Khair, Universitas Negeri Padang, Indonesia

ABSTRACT

This study aims to determine the effect of using ultrasonic waves on the NaP zeolite synthesis process using the NaX zeolite synthesis method. Preparation of NaP zeolite through the stages of preparation, activation, aging, and dehydration. Activation uses the green chemistry method, namely ultrasonic waves, which has the advantage of being a very simple, fast reaction and can optimize the use of chemical solutions. With time variations of 10, 20, 30, 40, and 60 minutes respectively, and aging time for 12 hours, then dried in an oven at 105 °C. Products are characterized by FTIR, XRD, and BET. The results show the potential for the formation of NaP zeolite. The product, after activation via sonication, reduced the particle size to 19.83 nm, and the large surface area increased to 125,499 m²/g.

ARTICLE HISTORY

Submitted 27/01/2023

Revised 01/02/2023

Accepted 03/05/2023

KEYWORDS

Ultrasonic; Zeolite NaP; Green Chemistry

CORRESPONDENCE AUTHOR

✉ laratriyuni99@gmail.com

DOI: <https://doi.org/10.30743/cheds.v7i1.6580>

1. PENDAHULUAN

Zeolit adalah senyawa aluminosilikat berpori yang dibangun oleh unsur oksigen, aluminium dan silikon dalam morfologinya. Pori-pori zeolit mampu menyerap molekul secara selektif (Tran-Nguyen et al., 2021). Unit-unit tetrahedral SiO₄⁴⁻ dan AlO₄⁵⁻ bergabung dengan jembatan atom oksigen. Pada zeolit terdapat rongga yang terdistribusi secara merata dalam dimensi molekul, kisaran ukuran pori zeolit adalah 0,3–0,9 nm (Sari & Muttaqin, 2016)

Berdasarkan karakteristiknya zeolit terbagi dua yaitu zeolit alam dan zeolit sintetis. Zeolit alam tidak memiliki ukuran pori yang seragam dan masih banyak impuritas yang menyebabkan zeolitharus diaktivasi terlebih dahulu sebelum digunakan. Zeolit sintetis memiliki struktur dan ukuran pori yang sama sertadapat dimodifikasi sesuai dengan kegunaannya (Suryani & Candra, 2017)

Zeolit dibentuk dari alumina dan silika, sehingga dapat dibuat dengan mencampurkan kedua senyawa tersebut, yang komposisinya disesuaikan dengan menambahkan natrium hidroksida (NaOH) dalam jumlah yang sesuai (Gargiulo et al., 2018). Ada beberapa zeolit sintetis antara lain zeolit sodalit yang terdiri dari zeolit X yang memiliki rasio SiO₂/Al₂O₃ = 1,0-1,5 dan zeolit Y rasio SiO₂/Al₂O₃ > 3,0 serta zeolit NaP dengan rasio SiO₂/Al₂O₃ = 2-5.

Zeolit NaX merupakan kristal aluminosilikat yang memiliki 12 cincin tiga dimensi yang berongga besar dan struktur terdefinisi (Erten-Kaya & Cakicioglu-Ozkan, 2012). Zeolit P dalam bentuk natrium (NaP) merupakan material mikropori dengan topologi framework gismondine (GIS). Ukuran mikroporinya lebih kecil dibandingkan dengan zeolit lain seperti Faujasite (FAU), Linde tipe A (LTA) dan Mordenite (MOR). Rumus sel satuan zeolit NaP adalah Na₆[(AlO₂)₆(SiO₂)₁₀].15H₂O (Bunmai et al., 2020).

Diantara berbagai jenis zeolit, NaP adalah salah satu zeolit terstruktur yang paling menarik dengan saluran dua dimensi dengan pori bulat panjang terbuka yaitu 0,31 nm 0,44 nm dan 0,26 nm 0,49 nm (Bohra et al., 2014). Zeolit ini potensial untuk diaplikasikan dalam pemurnian air dan gas, katalis untuk hidrogenasi, alkilasi dan isomerisasi, dan sebagai adsorben untuk menghilangkan kontaminan seperti logam berat, gas beracun, pewarna dan polutan organik (Santasnachok et al., 2015).

Pal et al (2013) melaporkan sintesis zeolit NaP dengan menerapkan metode ultrasonik dan kristalisasi pada temperatur ruang selama 3 jam yang dilanjutkan dengan pemanasan hidrotermal, menghasilkan zeolit dengan ukuran partikel yang kecil. Dengan meningkatnya energi radiasi dan waktu radiasi, kristalinitas sampel zeolit yang disintesis sedikit meningkat. Rahayu et al (2015) mensintesis zeolit Y dari kaolin dan mendapatkan fasa zeolit NaP pada proses pemanasan terlama yaitu 21 jam.



Ultrasonik adalah gelombang berfrekuensi tinggi yaitu diatas 20 kHz yang dihasilkan oleh alat sonikator. Metode ultrasonik memiliki keunggulan berupa prosesnya yang relatif cepat, lebih murah dan juga minim pemakaian zat kimia (Handaratri & Yuniati, 2019). Sintesis dengan bantuan gelombang ultrasonik juga dapat meningkatkan pembubaran spesies silikat/aluminat, yang mempengaruhi pertumbuhan kristal zeolit. Metode sonikasi dapat mengurangi penggunaan reagen kimia sehingga memenuhi prinsip kimia hijau (Green Chemistry) (Sa'bandi et al., 2021). Oleh karena itu penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh gelombang ultrasonik dalam sintesis zeolit.

2. METODE PENELITIAN

2.1 Alat dan Bahan

2.1.1 Alat

Instrumen yang digunakan yaitu FTIR (*Subtech Spectrum ACII PEDS 4.00*), XRD (*Philip X'pert PRO merk PANalytical MPD PW3040/60*) dan BET (*Quantachrome Nova 1200e*).

2.1.2 Bahan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah alat-alat gelas laboratorium, oven, neraca analitik, *magnetic stirrer*, sentrifugasi dan *ultrasonic cleaner* (42 KHz, 35 watt). Bahan yang digunakan adalah Silika gel 60 (Merck), Aluminium oksida (Merck), NaOH (Merck), dan akuades.

2.2 Prosedur

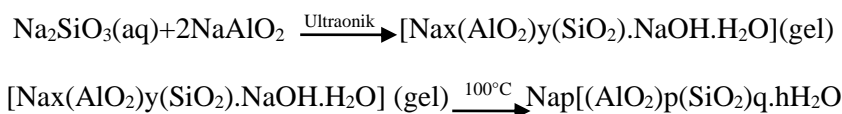
2.2.1 Preparasi Larutan Natrium Silikat dan Aluminat

Silika gel ditimbang sebanyak 3 gram dan dimasukkan ke dalam gelas kimia 250 mL dituangkan 50 mL larutan NaOH (1M) kedalam gelas lalu diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 300 rpm pada suhu 90°C selama 3 jam. Selanjutnya timbang 1 gram serbuk alumina dan 25 mL NaOH (1M) dan masukan ke dalam gelas kimia 250 mL diaduk sampai larut.

2.2.2 Sintesis Zeolit NaP

Larutan natrium silikat 50 mL dan natrium aluminat 25 mL dicampurkan kedalam gelas kimia 250 mL dan diaduk dengan kuat (800 rpm) selama 2 jam pada suhu 50°C. Setelah itu campuran dicuci menggunakan aquades sebanyak 3 kali untuk menghilangkan sisa logam oksida yang ada. Kemudian campuran aluminosilikat dimasukkan kedalam alat sonikasi untuk diaktivasi dengan suhu 70 °C dan variasi waktu berturut-turut 10 menit, 20 menit, 30 menit, 40 menit, 60 menit. Kemudian, larutan didiamkan selama 12 jam pada temperatur ruang. Supernatan itu kemudian, disentrifugasi dan dicuci dengan aquades sebanyak 3 kali pencucian, lalu dikeringkan dengan oven pada 105°C sampai berat konstan untuk mendapatkan bubuk zeolit NaP.

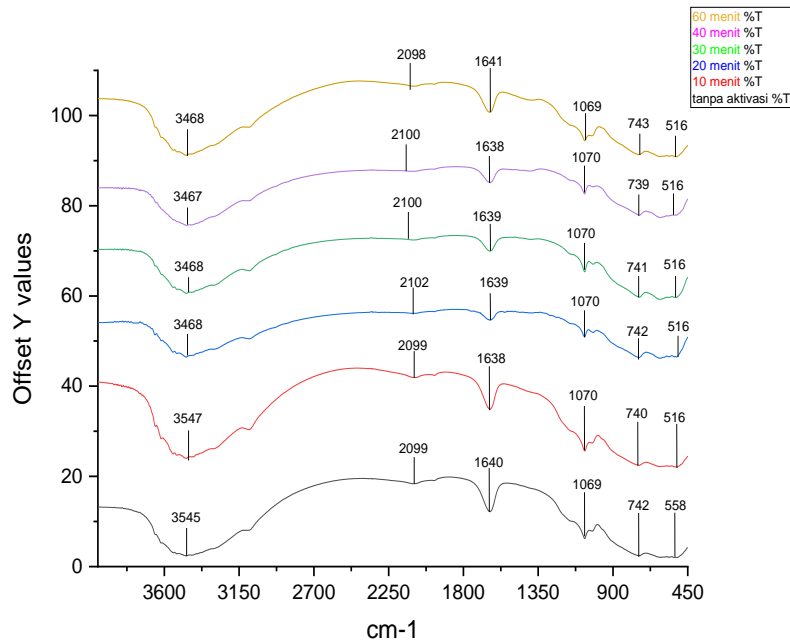
Berikut reaksi dari sintesis zeolit :



3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Karakterisasi dengan FTIR

Analisa FTIR dilakukan untuk melihat gugus-gugus fungsi yang terbentuk sebelum dan setelah diaktivasi menggunakan gelombang ultrasonik yang dilakukan pada gelombang 4000-450 cm^{-1} . Berdasarkan hasil karakterisasi FTIR, diperoleh spektrum sebagai berikut



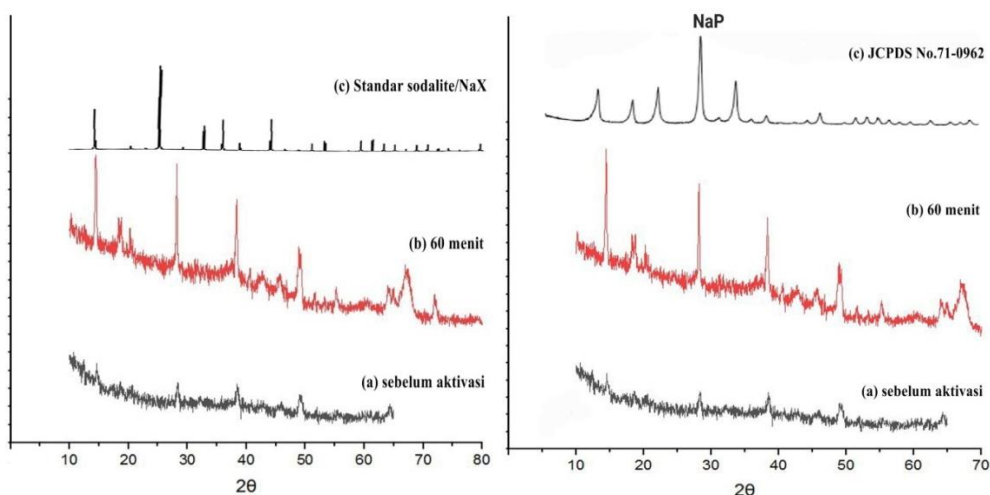
Gambar 1. Hasil FTIR zeolit tanpa ultrasonik, dan ultrasonik selama U10, U20, U30, U40, U60

Pada spektrum zeolit tanpa aktivasi dan yang diaktivasi selama 10, 20, 30, 40, 60 menit menggunakan gelombang ultrasonik telah menunjukkan karakteristik dari zeolit NaP. Hasil yang diperoleh tidak jauh berbeda dengan gugus fungsi yang dihasilkan oleh sampel menggunakan aktivasi dan yang tanpa aktivasi, hanya terjadi pergeseran bilangan gelombang, karakteristik dari zeolit NaP, yaitu : 3472, 1650, 1007, 747, 670, 572 and 465 cm^{-1} (Pal et al., 2013). Teridentifikasi beberapa pola gugus fungsi dengan pola yang sama yaitu terdapat uluran O-H yang menandakan adanya kandungan air, hal ini membuktikan zeolit bersifat higroskopis.

Hasil FTIR sampel diperoleh gugus OH pada Si-OH pada bilangan gelombang 2099 - 2100 cm^{-1} yang dihasilkan dari penyerapan air pada permukaan silika (Rilyanti et al., 2020). Perbedaan bilangan gelombang ini menunjukkan bahwa gugus O-H semakin berkurang. Pita serapan pada 1600-1700 cm^{-1} menunjukkan adanya ikatan O-H yang berasal dari molekul air dalam struktur zeolit, Pada pita serapan 1000-1070 cm^{-1} menunjukkan regangan asimetris Si-O atau Al-O pada zeolit NaP. Kemudian, teridentifikasi gugus Si-O dan Al-O pada pita serapan 500-516 cm^{-1} , spektrum tampak pada kisaran 400-1300 cm^{-1} disebabkan oleh ikatan eksternal antara unit tetrahedral yang dipengaruhi oleh unit penyusun sekunder, seperti cincin dan pori (Setiadji et al., 2019)

3.2 Karakterisasi dengan XRD

Analisis menggunakan difraksi sinar-X dalam penelitian ini berfungsi untuk memberikan informasi puncak puncak intensitas pada sudut 2θ 0° - 100° .



Gambar 2. Perbandingan produk zeolit hasil sintesis dengan zeolit NaX dan NaP standar

Dari Gambar 2. menunjukkan efek sonikasi dalam meningkatkan kristalinitas produk dengan makin tajamnya puncak difraktogram setelah aktivasi dengan sonikasi. Berdasarkan hasil XRD dari produk yang dihasilkan mengindikasikan mulai terbentuknya zeolit NaP. Hal ini ditunjukkan dengan adanya puncak difraktogram seperti pada $2\theta = 28^\circ$ dan sudut lainnya $18,53^\circ$; $20,32^\circ$; $28,38^\circ$; $38,53^\circ$ yang merupakan sebagian dari puncak karakteristik zeolit NaP menurut standar pengukuran JCPDS (*Joint Committee of Powder Diffraction Standard No.71-0962*). Pergeseran posisi puncak difraksi dapat disebabkan oleh beberapa hal, antara lain komposisi senyawa (adanya pengotor), tegangan kisi, dan suhu (Setiadji et al., 2019). Zhang dkk (2019) melaporkan bahwa ultrasonik meningkatkan konsentrasi spesies silikat terlarut, sehingga memungkinkan mereka bergabung kedalam kerangka tetrahedral terkoordinasi.

Metode yang sama dari sumber silika abu sekam padidengan bantuan metode refluks sebelumnya telah sukses menghasilkan zeolit NaX (Tran-Nguyen et al., 2021), dan metode yang sama dengan sumber silika koloidal dengan metode hidrotermal-sonikasi menghasilkan zeolit NaX (Zhang et al., 2019). Dengan demikian pada penelitian ini dengan metode yang sama dengan sumber silika gel dan melibatkan sonikasi belum menghasilkan zeolit NaX, tapi mengindikasikan pembentukan zeolit lain, NaP.

Sintesis zeolit seringkali berakhir dengan campuran zeolit dan NaP adalah salah satu jenis zeolit yang cukup sering dijumpai (Rahayu et al., 2015) didapatkan dengan metode sintesis zeolit X, Y dan A sering kali fasa zeolit NaP ditemukan, ini dikarenakan dari pengaruh proses pemanasan yang lama serta rasio SiO_2/Al_2O_3 sehingga zeolit dalam larutan NaOH akan menghasilkan formasi dari zeolit NaP. Seperti yang terlihat pada gambar 2. Hasil sintesis yang terbentuk memiliki struktur kristal, berdasarkan difraktogram. Seperti yang telah dilakukan Rahayu et al., (2015) mensintesis zeolit Y dari kaolin dengan metode hidrotermal, namun menghasilkan zeolit NaP pada waktu sintesis 21 jam.

Dari hasil XRD diperoleh ukuran kristal produk dengan perhitungan menggunakan persamaan Scherrer sebagai berikut :

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta}$$

Keterangan :

D = ukuran kristal, k adalah faktor bentuk dari kristal (0,9-1)

λ = panjang gelombang dari sinar-X ($1,54056 \text{ \AA}$)

β = nilai dari Full Widht at Half Maximum (FWHM) rad

θ = sudut difraksi (derajat)

Tabel 1. Crystals Size of NaX Zeolite

Zeolit	Ukuran Kristal (nm)
Sebelum Aktivasi	23,15
Setelah Aktivasi	19,83

Berdasarkan difraktogram XRD menggunakan perhitungan persamaan Scherrer, ukuran partikel zeolit kristal NaP dapat diperkirakan sekitar 19 nm setelah aktivasi. Harga ini lebih kecil daripada sebelum aktivasi sekitar 23 nm. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa aktivasi ultrasonik dapat memperkecil ukuran partikel kristal zeolit NaP.

3.3 Penentuan Luas Permukaan Spesifik Produk

Luas permukaan spesifik dan volume pori total sebelum dan sesudah aktivasi ditampilkan dalam Tabel 2. Proses sonikasi terlibat dalam meningkatkan luas permukaan BET dan volume pori. Berdasarkan hasil karakterisasi diperoleh data sebagai berikut.

Tabel 2. Hasil Adsorpsi-Desorpsi N_2

Sampel	S_{BET} (m^2/g)	Total diameter pori (\AA)	V_{total} pori (cc/gr)
Tanpa aktivasi	110.569	61.0885	0.2125
Ultrasonik (U60)	125.499	67.1725	0.221

Hasil adsorpsi-desorpsi N_2 zeolit NaP sebelum aktivasi dan setelah aktivasi tercantum pada Tabel 2. Dengan komposisi yang serupa, sampel disintesis menggunakan ultrasonik (60 menit) terbukti menunjukkan luas permukaan lebih besar. Luas permukaan sampel zeolit NaP meningkat dari $110.569 \text{ m}^2/g$ menjadi $125.499 \text{ m}^2/g$. Sampel setelah aktivasi memiliki luas permukaan spesifik terbesar karena memiliki ukuran partikel terkecil dan distribusi ukuran partikel yang lebih sempit seperti yang dikonfirmasi oleh hasil XRD pada gambar 2.

Ultrasonikasi yang dapat memecah aglomerasi dan meningkatkan dispersi dari partikel dengan mempengaruhi luas permukaan dan struktur zeolit NaP (Sulungbudi et al., 2017). Ultrasonik selain mempercepat reaksi dan meningkatkan pertumbuhan kristal zeolit NaP juga mempercepat kinetika reaksi dan mengurangi derajat aglomerasi (penggumpalan partikel) zeolit NaP diteliti (Ramirez Mendoza et al., 2020), sehingga partikel kristal akan semakin kecil dan luas permukaan akan semakin besar. Berikut perbandingan luas permukaan zeolitNaP dari beberapa penelitian.

Tabel 3. Perbandingan luas permukaan zeolit NaP yang disintesis dengan penelitian lainnya

Sumber Silika	Metode	S _{BET} (m ² /gr)	Referensi
Silica gel	Ultrasonik	125.499	Penelitian ini
Fly ash	Microwave	26,8	(Y. Zhang et al., 2021)
Natrium silikat	Hidrotermal	31,11	(Huo et al., 2012)
Abu sekam padi	Hidrotermal	85	(Bohra et al., 2014)
Silika koloidal	Ultrasonik	102	(Pal et al., 2013)

4. SIMPULAN DAN SARAN

4.1 Simpulan

Produk dari metode sintesis ini menunjukkan adanya zeolit yang berhasil disintesis ditandai dengan adanya gugus fungsi Si-O dan Al-O, dan mengindikasikan adanya fasa NaP pada sudut 2 θ 18,76°, 28,38°; dan 38,53° sesuai standar pengukuran JCPDS No. 71-0962 dan meningkatkan luas permukaan zeolit NaP dari 110.569 m²/g menjadi 125.499 m²/g.

4.2 Saran

Optimasi metode sintesis dan aktivasi sonikasi diperlukan untuk mengkonfirmasi zeolit yang terbentuk.

5. UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada LP2M UNP untuk bantuan pendanaan penelitian ini dengan skema PNPB No. kontrak 958/UN35.13/LT/2022..

6. DAFTAR PUSTAKA

- Bohra, S., Kundu, D., & Naskar, M. K. (2014). One-pot synthesis of NaA and NaP zeolite powders using agro-waste material and other low cost organic-free precursors. *Ceramics International*, 40(1 PART A), 1229–1234. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.06.001>
- Bunmai, K., Osakoo, N., Deekamwong, K., Kosri, C., Khemthong, P., & Wittayakun, J. (2020). Fast synthesis of zeolite NaP by crystallizing the NaY gel under microwave irradiation. *Materials Letters*, 272, 127845. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2020.127845>
- Erten-Kaya, Y., & Cakicioglu-Ozkan, F. (2012). Effect of ultrasound on the kinetics of cation exchange in NaX zeolite. *Ultrasonics Sonochemistry*, 19(3), 701–706. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2011.10.010>
- Gargiulo, N., Shibata, K., Peluso, A., Aprea, P., Valente, T., Pezzotti, G., Shiono, T., & Caputo, D. (2018). Reinventing rice husk ash: derived NaX zeolite as a high-performing CO₂ adsorbent. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 15(7), 1543–1550. <https://doi.org/10.1007/s13762-017-1534-5>
- Handaratri, A., & Yuniati, Y. (2019). Kajian Ekstraksi Antosianin dari Buah Murbei dengan Metode Sonikasi dan Microwave. *Reka Buana: Jurnal Ilmiah Teknik Sipil Dan Teknik Kimia*, 4(1), 63. <https://doi.org/10.33366/rekabuana.v4i1.1162>
- Huo, Z., Xu, X., Lü, Z., Song, J., He, M., Li, Z., Wang, Q., & Yan, L. (2012). Synthesis of zeolite NaP with controllable morphologies. *Microporous and Mesoporous Materials*, 158, 137–140. <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.03.026>
- Pal, P., Das, J. K., Das, N., & Bandyopadhyay, S. (2013). Synthesis of NaP zeolite at room temperature and short crystallization time by sonochemical method. *Ultrasonics Sonochemistry*, 20(1), 314–321. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2012.07.012>
- Rahayu, E. S., Subagjo, Walmiki, T., & Laniwati, M. (2015). Sintesis Zeolit Y dari Kaolin Terbenefisiasi. *Industrial Research Workshop and National Seminar*, 1(2), 141–148.
- Ramirez Mendoza, H., Jordens, J., Valdez Lancinha Pereira, M., Lutz, C., & Van Gerven, T. (2020). Effects of ultrasonic irradiation on crystallization kinetics, morphological and structural properties of zeolite FAU.

- Ultrasonics Sonochemistry*, 64(February), 105010. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2020.105010>
- Rilyanti, M., Gita Silviana, E., Buhani, B., D. Pandiangan, K., & Luh Gede Ratna Juliasih, N. (2020). Sintesis Dan Karakterisasi Zeolit Mordenit (Mor) Pori Hirarki Berbasis Silika Abu Ampas Tebu. *Analit: Analytical and Environmental Chemistry*, 5(02), 178–191. <https://doi.org/10.23960/aec.v5.i2.2020.p178-191>
- Sa'bandi, F., Aini, S., Nizar, U. K., & Khair, M. (2021). Preparasi Karbon Aktif dari Limbah Pelepah Kelapa Sawit dengan Aktivasi Ultrasonik sebagai Adsorben Rhodamin B. *Chemistry Journal of Universitas Negeri Padang*, 10(2), 59–63.
- Santasnachok, C., Kurniawan, W., & Hinode, H. (2015). The use of synthesized zeolites from power plant rice husk ash obtained from Thailand as adsorbent for cadmium contamination removal from zinc mining. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 3(3), 2115–2126. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2015.07.016>
- Sari, N. K., & Muttaqin, A. (2016). Pengaruh Waktu Sonikasi terhadap Konduktivitas Listrik Zeolit Berbahan Abu Dasar Batubara Menggunakan Metode Peleburan Alkali Hidrotermal. *Jurnal Fisika Unand*, 5(4), 322–326. <https://doi.org/10.25077/jfu.5.4.322-326.2016>
- Setiadji, S., Sundari, C. D. D., Aprilia, V., Sumiyanto, E., Novianti, I., & Ivansyah, A. L. (2019). Synthesis of zeolite NaX using elephant grass (*pennisetum purpureum*) as a silica source and its characterization. *Journal of Physics: Conference Series*, 1402(6). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1402/6/066016>
- Sulungbudi, G. T., Z.L., W., Salam, R., & Mujamilah, M. (2017). Pengendalian Suhu Ultrasonikasi Pada Pelapisan Nanopartikel Magnet (Fe₃O₄) Dengan Kitosan. *Jurnal Kimia Dan Kemasan*, 39(2), 95. <https://doi.org/10.24817/jkk.v39i2.2838>
- Suryani, P. E., & Candra, A. D. (2017). Analisis Pengaruh Iradiasi Microwave Terhadap Gugus Fungsional Pada Zeolite Sintesis. *Jurnal Ilmiah Teknosains*, 3(2). <https://doi.org/10.26877/jitek.v3i2.1887>
- Tran-Nguyen, P. L., Ly, K. P., Thanh, L. H. V., Angkawijaya, A. E., Santoso, S. P., Tran, N. P. D., Tsai, M. L., & Ju, Y. H. (2021). Facile synthesis of zeolite NaX using rice husk ash without pretreatment. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 000, 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2021.05.009>
- Zhang, X., Li, S., & Zhang, G. (2019). Synthesis of small crystals zeolite nax by a ultrasonic aging method. *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*, 14(3), 705–710.
- Zhang, Y., Han, H., Wang, X., Zhang, M., Chen, Y., Zhai, C., Song, H., Deng, J., Sun, J., & Zhang, C. (2021). Utilization of NaP zeolite synthesized with different silicon species and NaAlO₂ from coal fly ash for the adsorption of Rhodamine B. *Journal of Hazardous Materials*, 415(December 2020), 125627. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.125627>