

## Studi Pembuatan dan Karakterisasi Membran Pervaporasi Berbahan Dasar Zeolit Alam

Muslimin<sup>a</sup>, Taslimah<sup>a\*</sup>, Rahmad Nuryanto<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Chemistry Department, Faculty of Sciences and Mathematics, Diponegoro University, Jalan Prof. Soedarto, Tembalang, Semarang

\* Corresponding author: [taslimah@live.undip.ac.id](mailto:taslimah@live.undip.ac.id)

### Article Info

Keywords:  
Zeolite membrane,  
support layer,  
pervaporation

Kata Kunci:  
Membran zeolit,  
support layer,  
pervaporasi

### Abstract

Inorganic membrane preparation by mixing  $\gamma$  alumina kaolin and water has been done. Then add the additive mixture until the paste is obtained. The paste is molded into pellet form, calcined at a temperature of 1250°C for 4 hours, then coated with zeolite paste. The resulting membrane was heated at 400°C and 1250°C for 4 hours. Membrane characterization was performed using universal testing machine, XRD, SEM and soaking test. It was concluded that the zeolite membrane with the activation temperature of 400°C had the greatest compressive strength of  $13.73 \times 10^{-3}$  (N/mm<sup>2</sup>). The mineral components of the membrane constituent were mordenite, while the alumina and kaolin were in an amorphous state. Morphology of membrane surface formed was not uniform, membrane with heating 1250 °C has strength and endurance in immersion test in water.

### Abstrak

Pembuatan membran anorganik dengan cara mencampurkan  $\gamma$  alumina kaolin dan air telah dilakukan. Selanjutnya ditambahkan campuran bahan aditif hingga diperoleh pasta. Pasta dicetak menjadi bentuk pelet, dikalsinasi pada suhu 1250°C selama 4 jam, selanjutnya dilapisi dengan pasta zeolit. Membran yang dibuat dipanaskan pada 400°C dan 1250°C selama 4 jam. Karakterisasi membran dilakukan dengan menggunakan universal testing machine, XRD, SEM dan uji perendaman. Disimpulkan bahwa membran zeolit dengan suhu aktifasi 400°C mempunyai kuat tekan yang paling besar yakni  $13,73 \times 10^{-3}$  (N/mm<sup>2</sup>). Mineral komponen penyusun membran adalah mordenit, sedangkan alumina dan kaolin dalam keadaan amorf. Morfologi permukaan membran yang terbentuk tidak seragam, membran dengan pemanasan 1250°C memiliki kekuatan dan ketahanan pada uji perendaman dalam air.

### 1. Pendahuluan

Pervaporasi adalah salah satu proses pemisahan menggunakan membran untuk pemurnian etanol, kemampuan pervaporasi pemisahan campuran azeotrop dengan proses yang sederhana dan tanpa memerlukan penambahan zat kimia [1].

Membran anorganik yang umum digunakan yaitu membran zeolit dengan campuran alumina dan silika. Membran zeolit memiliki kelebihan diantaranya tidak menimbulkan *swelling*, memiliki struktur molekul seragam, berpori [2]. Stabil pada proses kimiawi dan termal. Dengan demikian, zeolit

memiliki potensi digunakan pada proses pervaporasi bioetanol [3]. Teknologi pemisahan dengan membran mempunyai peranan yang sangat penting. Keunggulannya yaitu dapat memisahkan spesi-spesi kimia secara spesifik, dapat beroperasi pada suhu rendah, hemat energi, prosesnya tidak destruktif terhadap zat-zat yang dipisahkan, dan tidak menimbulkan dampak yang negatif terhadap lingkungannya [4]. Peranannya menjadi sangat besar, misalnya dalam pengolahan air buangan industri, bioteknologi, industri farmasi, dan dalam teknologi pemisahan lainnya.

Ariestya *dkk.* [1] telah melakukan kajian pembuatan *Support Layer* untuk membran pervalorasi dengan menggunakan bahan zeolit sintesis yang hasil membran berbentuk *tube* namun pada pemanasan 1250°C *tube* tersebut mengalami perubahan fisik menjadi bengkok

Berdasarkan hasil penelitian diatas pada penelitian ini dilakukan pembuatan membran zeolit dengan menggunakan bahan baku zeolit alam. Membran yang di buat berbentuk pelet. Zeolit alam yang digunakan diaktifasi dengan asam dan dipanaskan dengan variasi suhu 200, 300 dan 400°C diharapkan zeolit akan memiliki luas pori yang lebih baik.

## 2. Bahan Dan Metode

### Alat dan Bahan

Bahan-bahan yang digunakan adalah  $\gamma$  Alumina, *Polyethylene glycol*, *Sodium citrate Carboxy methylcellulose*, Kaolin, *Magnesium sulfate*, Zeolit Alam. Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah Gelas beker, oven, *furnace*, gelas ukur, *ekstruder*, *X-ray diffraction* (XRD),

### Preparasi zeolit

Zeolit alam di hancurkan dengan proses mekanik hingga halus setelah itu, di lakukan pemisahan dengan ukuran ayakan 100 mesh. Zeolit yang sudah di ayak dilarutkan kedalam HF 1% selama 10-15 menit lalu dinetralkan dengan aquades hingga pH netral, kemudian di keringkan dalam oven [5]. Aktifasi zeolit alam dilakukan dengan proses kalsinasi dengan variasi suhu 200, 300° dan 400°C selama 4 jam.

### Pembuatan (*Support Layer*)

Pembuatan *Support Layer* dengan cara mencampurkan bahan utama  $\gamma$  alumina dan kaolin, ditambahkan zat aditif yang terdiri dari campuran, *carboxymethyl cellulose* 3 g, *polyethylene glycol* 0,8 ml, *sodium citrate* 2 g, dan *Magnesium sulfate* 2 g. Campuran di *mixing* selama 15 menit. Kemudian ditambah air ke dalam campuran secara tetes per tetes. Selanjutnya di *pugging* selama 30 menit sehingga campuran berbentuk pasta, yang homogen dan elastis. Selanjutnya dilakukan *ageing* selama 30 menit, pada suhu kamar dimana ruang tempat penyimpanan bahan tidak terkena cahaya matahari. Pasta kemudian dicetak. dikeringkan pada suhu kamar selama 3 hari. Kalsinasi *support layer* dalam cetakan dilakukan pada suhu 1250°C selama 4 jam [6].

### Pembuatan Membran Zeolit

Membuat pasta dengan melarutkan zeolit dengan air dan *polyethylene glycol*  $\pm$  4 ml. Kemudian dilakukan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* hingga larutan jenuh dan kental. Panaskan

*clear solution* hingga mencapai suhu 80 °C. lapiskan pasta permukaan *support layer* dengan tiga kali pengulangan, selanjutnya dikeringkan selama 3 hari pada suhu kamar, selanjutnya dipanaskan pada suhu 400°C selama 4 jam

### Karakterisasi Membran Zeolit

Karakterisasi dilakukan untuk mengetahui karakter dan kemampuan membran zeolit meliputi kekuatan mekanik dengan menggunakan alat Universal Testing Machine. SEM untuk mengetahui struktur mikro suatu material berupa morfologi lapisan membran [7]. X-Ray Difrraction digunakan untuk mengidentifikasi jenis mineral penyusun membran yang terbentuk. Uji perendaman dalam air dilakukan dengan cara merendam membran kedalam air selama 3 hari.

## 3. Hasil dan Pembahasan

### Preparasi

Preparasi sampel dilakukan untuk memperoleh ukuran partikel lolos ayakan 100 mesh dan untuk memperbesar luas permukaan zeolit alam sehingga kemampuan adsorpsi dapat lebih optimal. Perendaman zeolit dalam larutan HF 1% selama 10 menit. Bertujuan untuk melarutkan oksida-oksida pengotor yang masih ada pada zeolit. Zeolit yang sudah direndam dengan larutan HF 1% yang mempunyai pH asam sekitar 3-4, kemudian pH zeolit dinetralkan sampai pH 7 dengan cara pencucian menggunakan akuades dan dikeringkan dengan variasi suhu 200,300, dan 400°C selama 4 jam [8].

### Pembuatan Membran Zeolit .

Pada pembuatan *support layer* dengan komposisi alumina : kaolin = 50 : 30 [1]. *Zat aditif* yang di tambahkan *carboxy methyl cellulose* fungsi penambahan CMC yaitu sebagai pengental, stabilisator, pembentuk gel, sebagai pengemulsi dan perekat *polyethylene glycol*, *sodium citrate*, *Magnesium sulfate*, fungsinya untuk meningkatkan kekuatan dari *support*, sebelum mengalami perlakuan panas, atau di sebut *green body*[9] Setelah itu dibentuk menjadi suatu pasta dengan ditambahkan air. Campuran bahan organik dan anorganik di *pugging*. Campuran didiamkan selama 15 menit tujuannya terjadi penguapan agar *support layer* tidak retak saat dicetak.

*Support Layer* yang terbentuk di kering anginkan selama 3 hari dan kemudian di *furnace* pada suhu 1250°C selama 4 jam, Pelapisan zeolit dilakukan dengan membuat *clear solution* yang terdiri dari zeolit alam PEG dan air. Kemudian bahan tersebut di campur di buat pasta. Pasta zeolit tersebut kemudian dilapiskan pada *support layer* dan kemudian dipanaskan pada suhu 400°C dan 1250°C [10].

Hasil membran zeolit yang telah dilapisi memiliki permukaan pori-pori tampak lebih rapat dan berwarna lebih kecoklatan yang merupakan warna dari zeolit alam, yang mana hasilnya terlihat pada gambar dibawah ini.



Gambar 1. Hasil Membran Zeolit

**Uji Tekan**

Uji kuat tekan dilakukan untuk mengetahui kemampuan membran menahan beban. Kuat tekan (*compression strength*) yaitu besarnya gaya tekan (*newton*) tiap satuan luas penampang benda ( $m^2$ ) sampai membran hancur. Tujuan aplikatif dari kuat tekan membran adalah mengetahui kisaran tekanan maksimum sebelum membran hancur jika dikenai gaya yang berasal dari luar, pompa kompresor.

Pengujian kuat tekan ini menggunakan alat *Universal Testing Machine*. Adapun skema pengujian membran yaitu dengan memberikan gaya tekan pada permukaan membran penekan terhubung dengan komputer. Gaya tekan memiliki arah dari atas ke bawah menuju membran yang terpampang ke atas, dimana posisi membran ditunjukkan dengan dua sisi yang berlawanan dijepit oleh sistem penyangga. Hasil uji tekan disajikan pada tabel berikut.

Tabel 1: Hasil uji tekan

Suhu aktivasi	Luas ( $mm^2$ )	Beban Maksimal (N)	Kokoh Tekan ( $N/mm^2$ )
200°C	1256	5.061	$4,3 \cdot 10^{-3}$
300°C	1256	14.652	$11,66 \cdot 10^{-3}$
400°C	1256	17.249	$13,73 \cdot 10^{-3}$

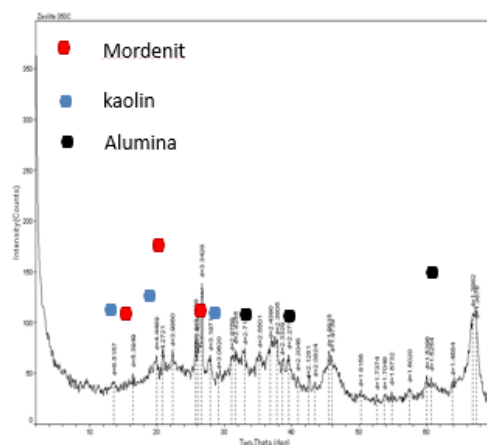
Pada percobaan ini dihasilkan suhu terbaik untuk aktivasi pada pemanasan 400°C karna memiliki kuat tekan paling baik. Pada suhu dibawah ini maka belum semua air dan bahan-bahan organik pengotor teruapkan hal ini yang menyebabkan kekuatan benda uji berkurang. Namun bila suhu lebih dari 400°C maka dimungkinkan terjadi kerusakan pada kerangka zeolit yang menyebabkan kemampuan adsorpsinya terhadap uap air menurun pada saat aplikasi. Kecenderungan hasil perlakuan dengan panas terhadap zeolit alam Indonesia ini

sesuai dengan hasil yang diperoleh pada zeolit alam Turki dimana kemampuan adsorpsi zeolit alam Turki mula-mula meningkat seiring dengan peningkatan suhu aktivasi, akan tetapi setelah suhu diatas 400°C kemampuan adsorpsi zeolit turun. Stabilitas atau ketahanan zeolit ini terhadap panas relatif rendah, berkisar pada suhu 300-700°C tergantung pada struktur masing-masing zeolit [11, 12].

**Karakterisasi Menggunakan XRD**

Karakterisasi membran zeolit dengan difraktometer sinar X. karakterisasi ini dilakukan untuk mengetahui jenis mineral. Pengujian dengan XRD menghasilkan difraktogram yang merupakan perbandingan antara sudut ( $2\theta$ ) terhadap intensitas difraksi. Difraktogram tersebut memberikan informasi tentang jenis mineralnya.

Difraktogram hasil pengukuran disajikan pada gambar berikut:



Gambar 2. Difraktogram Membran Zeolit

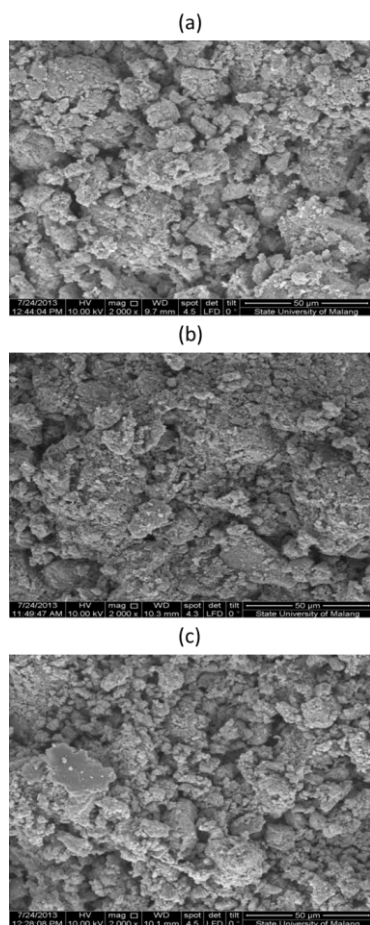
Dengan membandingkan sudut difraksi diatas dengan sudut difraksi standar JCPDS, maka dapat dikelompokkan pada tabel 2. Analisis hasil difraksi sinar-X dilakukan dengan metode Hanawalt dengan menggunakan *Data Base JCPDS (Joint Committee Powder Diffraction Standard)*. Hasil difraksi sinar X dari benda uji, mineral yang terbentuk *peak* adalah mordenit. Mordenit berasal dari zeolit yang digunakan sebagai pelapisan *Support Layer* dengan pemanasan 400°C sehingga struktur tidak mengalami kerusakan. Sedangkan struktur pada alumina dan kaolin yang berasal dari *Support Layer* mengalami kerusakan karena pemanasan suhu tinggi 1250°C. Bentuk puncak yang relatif landai dan lebar menandakan bahwa struktur yang terbentuk ada pada keadaan amorf. Untuk masing-masing komposisi seperti yang terlihat pada tabel 2 dibawah ini.

Tabel 2: Harga 2θ Kandungan Mineral Zeolit membran

Membran Zeolit		JCPDS		Jenis mineral
2(θ)	I/I <sub>0</sub>	2(θ)	I/I <sub>0</sub>	
22.28	17	22.20	70	Mordenit
26.64	82	26.26	35	JCPDS
32.98	15	32.96	2	No.29-1257
45.50	20	45.54	20	Alumina
67.43	67	67.30	30	JCPDS
39.54	19	39.85	10	No.04-0878
26.60	49	26.74	5	Kaolin
35.16	18	35.02	50	JCPDS
20.77	48	20.54	60	No.03-0058

**Karakterisasi Menggunakan SEM**

Pada analisis menggunakan SEM dapat dilakukan untuk menentukan morfologi permukaan *support layer* zeolit. Sampel yang dianalisa menggunakan SEM ada 3 yaitu sampel A dengan suhu aktivasi zeolit 200°C, sampel B dengan suhu aktivasi zeolit 300°C dan sampel dengan suhu aktivasi 400°C.



Gambar 3. Marfologi permukaan Membran zeolit perbesaran 2000 kali (a) aktivasi pada 2000°C (b) aktivasi pada 3000°C (c) aktivasi pada 4000°C

Dari gambar 3 dapat diamati morfologi permukaan membran zeolit dengan suhu aktivasi 200, 300 dan 400°C tidak terdapat perbedaan yang nyata pada permukaannya memiliki bentuk yang tidak teratur. Ketidak teraturan permukaan ini dikarenakan masih besarnya partikel-partikel zeolit sebagai pelapis permukaan membran zeolit. Hal lain yang bisa terjadi karena kurangnya tekanan pada saat pelapisan membran sedangkan ukuran mineral didapat berkisar 2- 4 µm .

Pada tahap akhir penelitian dilakukan uji perendaman kedalam air terhadap benda uji yang dilapisi zeolit dengan pemanasan 400°C dan pemanasan benda uji 1250°C, dengan merendam membran kedalam air. Hasilnya membran yang dilapisi zeolit dengan pemanasan 400°C lapisan zeolitnya rontok. Sedangkan membran yang dipanaskan pada suhu 1250°C, lapisan zeolitnya tidak mengalami kerusakan. Hal ini mengindikasikan bahwa membran yang dipanaskan pada suhu 1250°C lebih kuat dan lebih tahan pada perendaman dalam air. Berdasarkan hal tersebut dapat dinyatakan bahwa membran yang dipanaskan 1250°C lebih baik dari membran yang dipanaskan 400°C . Perendaman ini adalah indikator dasar yang digunakan untuk mengetahui tingkat kekuatan dan kerapuhan membran saat digunakan [13].

**4. Kesimpulan**

Berdasarkan pembahasan diatas dapat disimpulkan bahwa membran zeolit yang dibuat dengan suhu aktivasi 400°C yang paling kuat dengan kuat tekan  $13,73.10^{-3}$  (N/mm<sup>2</sup>). Mineral komponen penyusun Membran Zeolit adalah: mordenit, sedangkan alumina dan kaolinit dalam keadaan amorf. Membran yang dipanaskan pada 1250°C selama 4 jam memiliki kekuatan dan ketahanan yang lebih besar pada perendaman dalam air.

**5. Daftar Pustaka**

- [1] Meta Devi Ariestya, Mahsunah Lulluil, Susanto Heru, Pembuatan dan Karakterisasi Support Layer Untuk Membran Pervaporasi, *Jurnal Teknologi Kimia dan Industri*, 1, 1, (2012) 222-228
- [2] Shin-Ling Wee, Ching-Thian Tye, Subhash Bhatia, Membrane separation process—pervaporation through zeolite membrane, *Separation and Purification Technology*, 63, 3, (2008) 500-516 <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2008.07.010>
- [3] Aisheng Huang, Weishen Yang, Hydrothermal synthesis of uniform and dense NaA zeolite membrane in the electric field, *Microporous and mesoporous materials*, 102, 1, (2007) 58-69 <http://dx.doi.org/10.1016/j.micromeso.2006.12.005>
- [4] Anil K Pabby, Syed SH Rizvi, Ana Maria Sastre Requena, Handbook of membrane separations:



- chemical, pharmaceutical, food, and biotechnological applications, CRC press, 2015.
- [5] Zhanzhao Yang, Yanmei Liu, Congli Yu, Xuehong Gu, Nanping Xu, Ball-milled NaA zeolite seeds with submicron size for growth of NaA zeolite membranes, *Journal of membrane science*, 392, (2012) 18-28  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2011.11.036>
- [6] Sonia Aguado, Jorge Gascón, Jacobus C Jansen, Freek Kapteijn, Continuous synthesis of NaA zeolite membranes, *Microporous and Mesoporous Materials*, 120, 1, (2009) 170-176  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.micromeso.2008.08.062>
- [7] Aisheng Huang, Nanyi Wang, Jürgen Caro, Synthesis of multi-layer zeolite LTA membranes with enhanced gas separation performance by using 3-aminopropyltriethoxysilane as interlayer, *Microporous and Mesoporous Materials*, 164, (2012) 294-301  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.06.018>
- [8] Zan Chen, Dehong Yin, Yinhui Li, Jianhua Yang, Jinming Lu, Yan Zhang, Jinqu Wang, Functional defect-patching of a zeolite membrane for the dehydration of acetic acid by pervaporation, *Journal of membrane science*, 369, 1, (2011) 506-513  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2010.12.034>
- [9] Cut Meurah Rosnelly, Pengaruh Rasio Aditif Polietilen Glikol Terhadap Selulosa Asetat pada Pembuatan Membran Selulosa Asetat Secara Inversi Fasa, *Jurnal Rekayasa Kimia & Lingkungan*, 9, 1, (2012) 25-29
- [10] Lulu Lai, Jia Shao, Qinqin Ge, Zhengbao Wang, Yushan Yan, The preparation of zeolite NaA membranes on the inner surface of hollow fiber supports, *Journal of membrane science*, 409, (2012) 318-328  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2012.03.068>
- [11] Mark W Ackley, Salil U Rege, Himanshu Saxena, Application of natural zeolites in the purification and separation of gases, *Microporous and Mesoporous Materials*, 61, 1, (2003) 25-42  
[http://dx.doi.org/10.1016/S1387-1811\(03\)00353-6](http://dx.doi.org/10.1016/S1387-1811(03)00353-6)
- [12] Pramatha Payra, Prabir K Dutta, Zeolites: a primer, *Handbook of zeolite science and technology*, (2003) 1-19
- [13] EJ Flynn, DA Keane, PM Tabari, MA Morris, Pervaporation performance enhancement through the incorporation of mesoporous silica spheres into PVA membranes, *Separation and Purification Technology*, 118, (2013) 73-80  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2013.06.034>