

# Preparasi Membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Menggunakan Metode *Secondary Growth* dengan Variasi *Vacuum Seeding*

Novia Dwi Permata, Triyanda Gunawan, dan Hamzah Fansuri  
Departemen Kimia, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)  
*e-mail*: triyandagunawan@gmail.com

**Abstrak**—Pada penelitian ini, dilakukan preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menggunakan metode *secondary growth* dengan teknik *vacuum seeding*. Pada proses *seeding* dilakukan sebanyak satu (M1), dua (M2), dan tiga kali (M3) dengan satu kali waktu *seeding* adalah 90 detik. Membran Alumina, *seed* Zeolit-X, dan membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dikarakterisasi menggunakan XRD (*X-Ray Diffraction*), PSA (*Particle Size Analyzer*), SEM (*Scanning Electron Microscopy*), dan FTIR (*Fourier Transform Infrared*). Permeabilitas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> pada membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hasil preparasi adalah  $1,52 \times 10^{-6}$  dan  $8,76 \times 10^{-10}$  mol.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>.Pa<sup>-1</sup>. Hasil uji permeasi gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> menunjukkan bahwa membran M2 adalah yang memiliki kinerja terbaik.

**Kata Kunci**—Membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, *Secondary Growth*, *Tubular  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, *Vacuum Seeding*, Zeolit-X.

## I. PENDAHULUAN

MEMBRAN zeolit diminati karena sifatnya yang sangat baik, seperti struktur mikropori yang seragam, stabilitas termal, dan kekuatan mekanik yang tinggi [1-2]. Salah satu tipe *faujasite* yaitu Zeolit-X yang memiliki diameter pori 0,74 nm digunakan untuk pelapisan membran alumina. Membran zeolit tipe *faujasite* menguntungkan untuk tingkat permeasi yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan tipe MFI dan LTA [3]. Pada penelitian sebelumnya metode preparasi membran zeolit yang pernah dikembangkan, antara lain *primary growth* dan *secondary growth*. Dalam *primary growth*, membran alumina dilapisi dengan larutan sintesis dan dilakukan sintesis hidrotermal secara langsung. Dalam *secondary growth*, membran alumina dilapisi *seed* zeolit sebelum dilakukan sintesis hidrotermal. Dari kedua metode tersebut, telah banyak digunakan metode *secondary growth* karena dianggap metode efektif untuk persiapan membran zeolit bebas *defect* [4].

Metode *secondary growth* menunjukkan berbagai keuntungan, seperti kontrol yang lebih baik atas mikrostruktur membran dan produktivitas yang tinggi [5]. Metode *secondary growth* melibatkan beberapa langkah dimana *seed* zeolit ditumbuhkan pada membran sebelum pertumbuhan hidrotermal [6]. Pada penelitian sebelumnya telah dilaporkan penumbuhan *seed* zeolit pada membran alumina dengan beberapa teknik yaitu *dipcoating*, *rub coating*, *spraying coating*, *spinning coating* dan *pulsed laser deposition*. Metode tersebut meningkatkan preparasi membran zeolit, tetapi memiliki keterbatasan masing-masing. Metode yang banyak digunakan adalah metode *dipcoating* namun *seed* zeolit tidak dapat menempel erat pada permukaan membran alumina dan mudah lepas ketika membran alumina ditarik dari larutan suspensi [7]. Oleh

karena itu digunakan *vacuum seeding* untuk persiapan penumbuhan *seed* zeolit yang melibatkan filtrasi *dead-end* atau *cross flow* [5]. *Vacuum seeding* dengan filtrasi *dead-end* atau *cross flow* dapat memberikan distribusi benih yang homogen pada permukaan membran alumina serta meningkatkan reproduksibilitas dalam preparasi membran zeolit dengan memisahkan nukleasi dan pertumbuhan kristal pada hidrotermal [6], [8]. Namun, perlu teknik dan parameter yang tepat untuk diperoleh pelapisan membran alumina yang seragam.

Pada penelitian ini dilakukan preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> melalui metode *secondary growth* menggunakan *vacuum seeding* dengan perbedaan jumlah *seeding* pada membran alumina yaitu satu, dua, dan tiga kali *seeding*, serta dilakukan pengujian permeasi gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> dari membran yang dipreparasi untuk mendapatkan membran zeolit yang paling optimal.

## II. URAIAN PENELITIAN

### A. *Pretreatment Membran Alumina*

Zeolit ditumbuhkan pada membran alumina untuk membentuk lapisan membran zeolit. Agar dapat digunakan untuk menumbuhkan zeolit maka membran alumina dibersihkan terlebih dahulu dari pengotor dengan cara direndam dalam air selama 24 jam, dilanjutkan dengan perendaman dalam aseton selama 24 jam. Selanjutnya membran dibersihkan menggunakan *ultrasonic bath* dalam aseton selama 20 menit kemudian membran dipanaskan ke dalam *furnace* selama 4 jam pada suhu 400 °C.

### B. *Sintesis Zeolit-X*

Pada penelitian ini menggunakan referensi sintesis Zeolit-X yang pernah dilakukan di departemen Kimia ITS yang merujuk pada penelitian oleh Zhang, dkk bahwa dengan sedikit modifikasi yaitu 4,0 Na<sub>2</sub>O:0,2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:1,0 SiO<sub>2</sub>:200 H<sub>2</sub>O [9]. Pertama NaOH dilarutkan dalam aqua DM dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer*. Larutan NaOH yang terbentuk dibagi menjadi dua bagian (A dan B) sama banyak dalam gelas polipropilena 500 ml yang berbeda. Larutan NaOH A dicampur dengan serbuk NaAlO<sub>2</sub> sedangkan larutan NaOH B dicampur dengan larutan Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>. Kedua larutan tersebut diaduk secara terpisah dengan kecepatan konstan selama kurang lebih 15 menit, dan selanjutnya larutan Natrium Silikat dimasukkan ke dalam larutan Natrium Aluminat secara perlahan-lahan dan diaduk selama 3 jam.

Campuran yang terbentuk, disebut sebagai prekursor Zeolit-X, dimasukkan ke dalam autoklaf lalu dipanaskan pada suhu 100 °C selama 24 jam. Setelah reaktor kembali ke

suhu kamar, padatan yang terbentuk di dalam reaktor disaring dan dicuci dengan aqua DM berulang kali hingga pH filtratnya mencapai sekitar 8. Serbuk padatan yang dihasilkan dari sintesis kemudian dikeringkan dalam oven dengan suhu 105 °C selama 15 jam diikuti dengan pendinginan dalam desikator sehingga mencapai suhu kamar. Serbuk padatan ini selanjutnya disebut *seed* Zeolit-X.

### C. Preparasi Membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> diawali dengan mencelupkan membran alumina ke dalam suspensi *seed* Zeolit-X. Lubang pada salah satu sisi membran ditutup dengan teflon *tape* agar suspensi tidak masuk ke dalam pompa vakum. Suspensi dibuat dengan mendispersikan 7 gram *seed* zeolit-X hasil sintesis ke dalam 1.000 ml aqua DM kemudian diaduk hingga terbentuk suspensi dan terus diaduk untuk mempertahankan suspensi [7]. Penempatan membran alumina yang tercelup dalam suspensi *seed* Zeolit-X dimana sisi membran alumina yang tertutup berada di dalam suspensi sedangkan sisi yang terbuka terhubung ke pompa vakum. Setelah itu pompa vakum dihidupkan untuk menimbulkan vakum di bagian dalam membran alumina sehingga suspensi *seed* Zeolit-X tersedot masuk ke dalam pori-pori membran alumina sehingga *seed* Zeolit-X berada di dalam pori membran.

Setelah proses vakum, membran yang telah mengandung *seed* Zeolit-X dikeringkan di dalam oven selama 3 jam pada suhu 100 °C. Selanjutnya, *support* yang telah diisi dengan *seed* dimasukkan ke dalam autoklaf berisi gel Zeolit-X. Setelah ditutup rapat, autoklaf dipanaskan di dalam oven pada suhu 100 °C selama 24 jam. Setelah itu, membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang dihasilkan dikeringkan dalam oven pada suhu 105 °C selama 15 jam diikuti dengan pendinginan dalam desikator hingga suhunya kembali mencapai suhu kamar.

### D. Uji Permeasi

Gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> digunakan dalam uji permeasi gas membran Zeolit-X/  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Pengujian dilakukan pada tekanan 5 bar dalam suhu ruang dan dilakukan dengan cara *dead-end*. Membran disiapkan ke dalam reaktor dan disegel (*sealed*) rapat sehingga tidak ada kebocoran. Setelah itu, gas N<sub>2</sub> dialirkan dari tabung gas dan diatur pada tekanan *feed* 5 bar yang diberikan kepada membran. Setelah dialirkan gas N<sub>2</sub> digantikan dengan gas O<sub>2</sub>. Gas yang berhasil menembus membran ditandai dengan naiknya gelembung pada *bubble flow* meter. Waktu tiap kenaikan volume dicatat untuk menentukan permeabilitas dan selektivitas membran terhadap kedua gas tersebut. Permeabilitas dan selektivitas membran dihitung menggunakan persamaan (1) dan (2). Permeabilitas gas dan selektivitas gas ideal dihitung menggunakan persamaan:

$$P = \frac{Q}{A \cdot t \cdot \Delta P} \quad (1)$$

di mana Q (mol) adalah konsentrasi dari komponen yang melewati membran pada waktu *t* (s). A (m<sup>2</sup>) adalah area membran, dan  $\Delta P$  (Pa) adalah tekanan yang berbeda antara *feed* dan sisi permeat. Selektivitas gas tunggal adalah rasio permeasi gas tunggal, dan selektivitas pemisahan adalah rasio permeasi campuran gas [9].

$$\alpha_{A/B} = \frac{P_A}{P_B} \quad (2)$$

Pada persamaan (2),  $\alpha_{A/B}$  adalah koefisien selektivitas ideal gas A dan B, yang dilaporkan sebagai rasio permeabilitas A dan B ( $P_A$  dan  $P_B$ ) [10].

### E. Karakterisasi

#### 1) Porositas Semu

Uji porositas membran alumina dilakukan untuk menentukan ukuran dan porositas membran terkait dengan proses *seeding* Zeolit-X. Pengujian dilakukan dengan metode yang disarankan Subaer yang digunakan untuk uji porositas semu geopolimer [11]. Selanjutnya membran alumina dibiarkan pada suhu ruang selama 12 jam lalu ditimbang. Tahap berikutnya membran alumina dimasukkan ke dalam air dan dipanaskan selama kurang lebih 2 jam pada suhu 60 °C. Setelah pemanasan selesai, membran alumina dibiarkan di dalam air selama 12 jam kemudian membran alumina dikeluarkan dari air kemudian ditimbang setelah tidak ada air yang menetes dari membran untuk mengetahui massa jenuh air ( $m_i$ ). Porositas membran alumina dihitung dengan persamaan (3):

$$\text{Porositas} = \frac{m_i - m_d}{m_d} \times 100\% \quad (3)$$

Keterangan:

$m_d$  : Massa membran alumina kering.

$m_i$  : Massa membran alumina jenuh air dan disuspensi di dalam air.

#### 2) Difraksi Sinar-X (XRD)

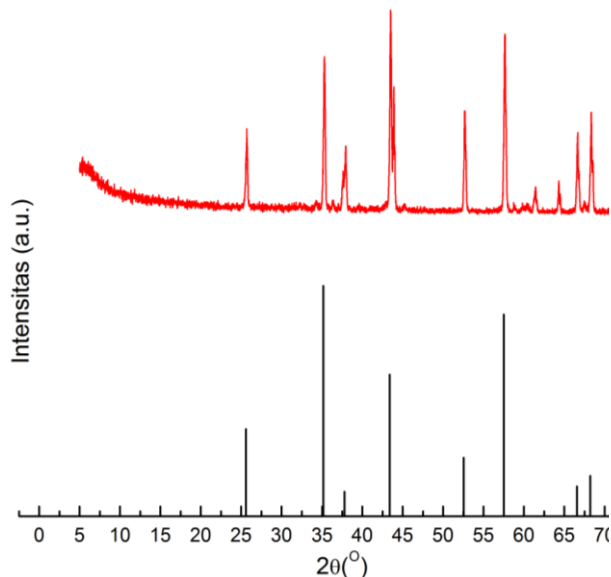
Zeolit-X, membran alumina, dan membran zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui fasa kristal yang terbentuk. Karakterisasi dilakukan dengan difraktogram menggunakan sinar-X dari radiasi CuK $\alpha$  ( $\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$ ) yang dibangkitkan dengan tegangan 40 kV dan arus 30 mA. Pengukuran dilakukan pada  $2\theta$  dari 5 sampai 100°.

#### 3) Particle Size Analyzer (PSA)

Zeolit-X hasil sintesis dianalisis ukuran partikelnya menggunakan PSA menggunakan metode *Dynamic Light Scattering* (DLS) yang memanfaatkan hamburan inframerah. Pengujian ukuran partikel dilakukan dengan metode basah, dimana metode ini menggunakan media pendispersi untuk mendispersikan sampel. Sampel didispersikan ke dalam media sehingga partikel tidak membentuk aglomerasi, dengan demikian partikel yang terukur adalah *single particle*. Selain itu, hasil pengukuran berada dalam bentuk distribusi, sehingga hasil pengukuran diasumsikan sebagai keseluruhan kondisi sampel.

#### 4) Fourier Transform Infrared (FTIR)

Spektroskopi inframerah digunakan untuk mengkarakterisasi padatan hasil sintesis zeolit-X sehingga dapat diketahui gugus fungsi yang ada pada padatan hasil sintesis. Sampel zeolit-X dianalisis pada bilangan gelombang 1400-400 cm<sup>-1</sup>. Masing-masing sampel ditambahkan dengan KBr sebagai pendispersi dengan perbandingan 1:10. Keduanya dihaluskan dan dibentuk pellet kemudian



Gambar 1. Difraktogram XRD dari (a) membran alumina, (b) standar JCPDS No. 46-1212.

diletakkan pada sampel holder dan dianalisa dengan spektrofotometer inframerah

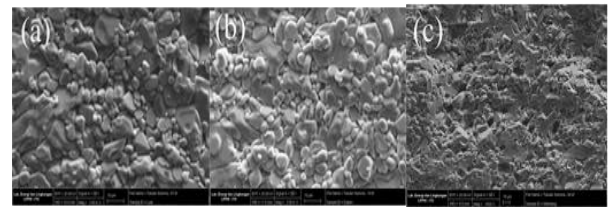
### III. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### A. Karakterisasi Membran Tubular Alumina

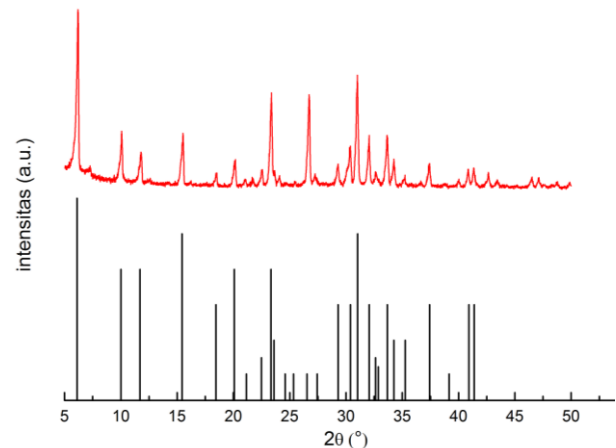
Membran alumina dikarakterisasi menggunakan XRD untuk mengetahui fasa kristal membran alumina dengan cara dibandingkan dengan standar. Gambar 1 hasil difraktogram membran alumina didapatkan puncak-puncak pada  $2\theta = 25,69^\circ; 35,27^\circ; 37,92^\circ; 43,50^\circ; 52,65^\circ; 57,65^\circ; 66,65^\circ; \text{ dan } 68,33^\circ$ . Difraktogram membran alumina sesuai dengan *Data Base Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS) No. 46-1212 Corundum  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  dapat disimpulkan membran alumina memiliki fasa alfa alumina ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ). Difraktogram membran alumina Gambar 1(a) terdapat puncak pada  $2\theta$  yaitu  $43,04^\circ$  dan  $57,26^\circ$  yang diperkirakan adanya senyawa lain pada membran alumina. Membran  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  memiliki keunggulan yaitu ukuran pori lebih besar dari 100 nm serta memiliki stabilitas yang sangat baik dalam pH basa dan asam. Oleh karena itu, digunakan membran  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  untuk pemisahan gas  $\text{O}_2/\text{N}_2$ .

Karakterisasi *Scanning Elektron Microscopy* (SEM) dilakukan untuk mengetahui morfologi membran alumina. Pori-pori penampang luar dan dalam membran cukup rapat jika dibandingkan dengan penampang melintang membran dapat dilihat pada Gambar 2.

Porositas membran alumina diukur menggunakan porositas semu dan mikrogaf SEM menggunakan program *imageJ*. Porositas semu didapatkan 0,78% dengan menggunakan persamaan (3). Pada perhitungan *imageJ* didapatkan porositas membran dan rata-rata diameter pori adalah 2,45%, 2-8  $\mu\text{m}$ . Menurut Younsi, porositas membran  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan diameter pori membran adalah 33,37%, 0,71  $\mu\text{m}$ ; 30%, 1  $\mu\text{m}$ ; 30-50%, 2-3  $\mu\text{m}$ , dan 50%, 0,1-0,3  $\mu\text{m}$  [9], [12-14]. Porositas membran pada penelitian ini didapatkan hasil yang cukup kecil. Sebaliknya, diameter pori cukup besar jika dibandingkan dengan penelitian lain. Namun, hasil *imageJ* yang didapatkan cukup membuktikan bahwa membran alumina merupakan membran makropori yang dapat dilapisi



Gambar 2. Mikrograf SEM membran alumina: (a) permukaan luar, (b) permukaan dalam, dan (c) penampang melintang.



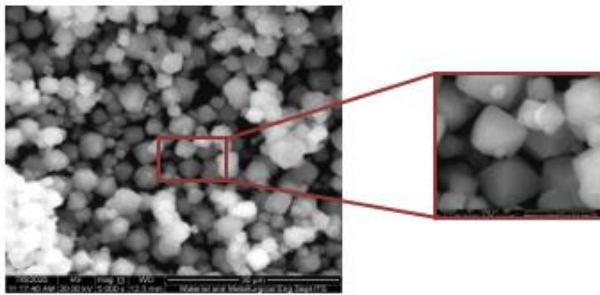
Gambar 3. Difraktogram Zeolit-X dari (a) standar JCPDS No. 12-0246, (b) Zeolit-X hasil sintesis.

oleh *seed* zeolit. Ukuran diameter pori dan porositas membran memiliki hasil cukup berbeda dengan penelitian sebelumnya karena hanya dihitung melalui dua dimensi. Oleh karena itu, diperlukan analisa lebih lanjut menggunakan merkuri porosimetri untuk mengetahui diameter ukuran membran.

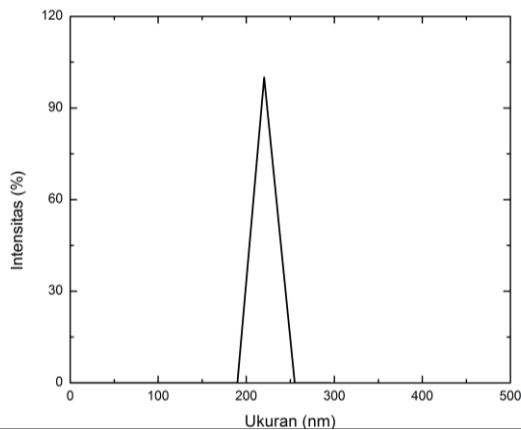
#### B. Hasil Sintesis Zeolit-X

Sintesis Zeolit-X dilakukan sesuai dengan komposisi molar  $4\text{Na}_2\text{O}:0,2\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2:200\text{H}_2\text{O}$  berdasarkan rasio yang pernah dilakukan [8]. Komposisi tersebut dapat diperoleh dengan menggunakan 1,55 gram  $\text{NaAlO}_2$ , 7,01 gram  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ , 141 mL aqua DM, dan 10,3511 gram NaOH. Pertama-tama 10,3511 gram padatan NaOH dilarutkan ke dalam 141 mL aqua DM (Gambar 3). Fungsi NaOH sebagai *mineralizer* dan *metalizer* untuk mempercepat proses kristalisasi dengan cara meningkatkan kemampuan melarutkan sehingga yang sebelumnya tidak dapat larut dalam air dengan ditambahkan *mineralizer* menjadi dapat larut [15-16]. NaOH juga berfungsi sebagai *metalizer* untuk menetralkan muatan negatif yang terbentuk akibat dari susunan alumino-silikat pada kerangka kristal zeolit serta sebagai penyedia ion  $\text{Na}^+$  yang berperan dalam pembentukan zeolit [17]. Pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* agar terbentuk larutan homogen. Setelah homogen larutan NaOH dipisah menjadi dua bagian sama banyak untuk ditambahkan 7,01 gram  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  dan 1,55 gram  $\text{NaAlO}_2$  pada bagian lainnya.  $\text{NaAlO}_2$  sebagai sumber alumina dan  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  sebagai sumber silika.

Pencampuran silika dilakukan secara perlahan-lahan agar silika yang terlarut sempurna ke dalam larutan NaOH memiliki probabilitas pembentukan Zeolit-X yang lebih besar. Jika silika tidak terlarut sempurna maka akan terbentuk pula Zeolit-A selain Zeolit-X [18]. Masing-masing larutan diaduk hingga homogen kemudian larutan Natrium Silikat dimasukkan ke dalam larutan Natrium Aluminat secara



Gambar 4. Mikrogaf SEM zeolit X.



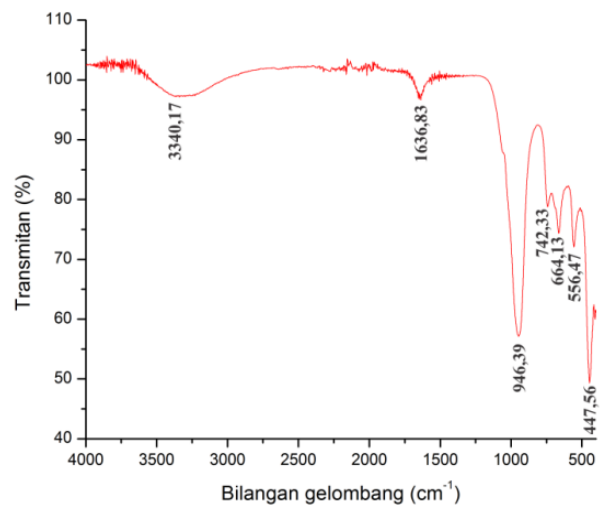
Gambar 5. Distribusi ukuran partikel pada zeolit-X.

perlahan dan diaduk selama 3 jam, larutan tersebut berbentuk gel berwarna putih.

Gel yang terbentuk, yang merupakan prekursor Zeolit-X, dimasukkan ke dalam autoklaf untuk dilakukan hidrotermal selama 24 jam pada suhu 100 °C. Metode hidrotermal dilakukan pada sistem tertutup untuk mencegah hilangnya pelarut saat dipanaskan diatas titik didihnya [19]. Sintesis dengan cara reaksi hidrotermal dapat diartikan sebagai sintesis kristal dan pertumbuhan kristal pada suhu dan tekanan tinggi untuk mendapatkan kristalinitas yang tinggi [15]. Waktu kristalisasi Zeolit-X dilakukan 24 jam karena memperpanjang waktu kristalisasi hingga 48 jam dengan suhu 100 °C dapat menghasilkan zeolit-P sebagai produk kristalisasinya [20]. Setelah proses hidrotermal, serbuk padatan yang terbentuk kemudian disaring dan dicuci dengan aqua DM hingga pH 8.

Proses reaksi hidrotermal dilakukan pada pH tinggi yaitu sekitar 13 sampai 14. Kondisi pH tinggi ini diperlukan dalam proses reaksi sintesis zeolit karena prekursor zeolit-X yaitu  $Al(OH)_4^-$  terbentuk pada  $pH > 6$  dan anion  $Si(OH)_4^-$  yang terbentuk pada  $pH > 12$  [21]. Untuk mendapatkan serbuk padatan Zeolit-X, dilakukan pengeringan. Serbuk Zeolit-X yang dihasilkan berwarna putih dan halus. Zeolit-X yang telah disintesis pada penelitian ini selanjutnya digunakan sebagai *seed* untuk *vacuum seeding* membran zeolit.

Zeolit-X kemudian dikarakterisasi menggunakan X-Ray Diffraction (XRD) untuk mengetahui kesesuaian fasa kristal Zeolit-X pada difraktogram dengan perbandingan pada standar. Hasil karakterisasi Zeolit-X menggunakan XRD didapatkan puncak-puncak pada  $2\theta = 6,22^\circ; 10,07^\circ; 11,82^\circ; 15,52^\circ; 26,73^\circ; 30,35^\circ; 30,35^\circ; 31,03^\circ; 32,06^\circ; 33,65^\circ;$  dan  $34,24^\circ$ , yang sesuai dengan JCPDS No. 12-0246. Pada puncak  $27,13^\circ$  terdapat puncak yang menunjukkan terbentuknya



Gambar 6. Spektra inframerah zeolit-X.

Tabel 1.  
Permeasi dan selektivitas membran

Membran	Permeasi ( $\times 10^{-9} \text{ mol.m}^{-2}\text{s}^{-1}\text{Pa}^{-1}$ )	
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>
M1	1520	1270
M2	64,8	54,5
M3	1,15	0,876

zeolit-A. Sodalit muncul pada puncak  $20,17^\circ$  dan  $32,06^\circ$ , namun pada hasil sintesis zeolit-X muncul puncak khas yang sesuai dengan standar JCPDS No. 12-0246 yang menunjukkan Zeolit-X sudah terbentuk dan dapat digunakan untuk *vacuum seeding* membran alumina.

Data XRD didukung oleh hasil analisa *Scanning Electron Microscopy* (SEM) seperti yang dapat dilihat pada Gambar 4. Morfologi kristal zeolit-X adalah oktahedral diikuti dengan butiran sodalit yang berbentuk hampir serupa dengan batu dan bentuk zeolit-A yaitu simpel kubus [22]. Meskipun terlihat adanya zeolit lain, namun dari hasil SEM tersebut terlihat zeolit-X sudah terbentuk.

Setelah dilakukan karakterisasi SEM, untuk mendapatkan gambaran yang lebih menyeluruh dari Zeolit-X yang dihasilkan maka dilakukan karakterisasi Particle Size Analyzer (PSA). Ukuran rata-rata partikel dan distribusi ukuran partikel dari sampel yang diperoleh ditentukan dengan menggunakan metode Dynamic Light Scattering (DLS). Pada Gambar 5 menunjukkan ukuran partikel rata-rata Zeolit-X adalah 7557 nm. Namun, pada grafik distribusi ukuran partikel Zeolit-X muncul pada puncak 221,4 nm.

Puncak dan ukuran rata-rata partikel Zeolit-X didapatkan nilai yang berbeda, jika dilihat dari panduan Zetasizer Nano ZS dengan ciri-ciri tersebut didapatkan dua kemungkinan penyebab hasil karakterisasi yang tidak sesuai. Pertama, sampel tidak terdispersi dengan baik sehingga terjadi sedimentasi. Partikel yang terukur adalah partikel kecil dari zeolit sehingga puncak yang muncul cukup rendah jika dibandingkan dengan ukuran rata-rata dari partikel zeolit. Kedua, partikel yang dianalisa terlalu besar sehingga tidak sesuai jika menggunakan instrumen Zetasizer Nano ZS untuk mengukur ukuran partikel, instrumen tersebut mampu membaca ukuran partikel 0,6 nm – 6  $\mu\text{m}$ . Namun ada cara lain untuk menghitung ukuran partikel zeolit melalui mikrogaf SEM menggunakan program imageJ. Didapatkan ukuran Zeolit-X yaitu 2-5  $\mu\text{m}$  yang lebih kecil dari ukuran

Tabel 2.

Perbandingan sifat permeasi gas dari membran zeolit dalam penelitian ini dengan membran zeolit dalam literatur.

Membran	Permeasi ( $\times 10^{-8} \text{mol.m}^{-2}\text{s}^{-1}\text{Pa}^{-1}$ )	
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>
MFI/ $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tube	0,08	0,29
NaY/ $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tube	4,2	2,4
NaA/ $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> disk	10,2	2,74
NaX/ $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tube	6,48	5,45

pori membran alumina 2-8  $\mu\text{m}$  sehingga seed Zeolit-X dapat melapisi pori-pori membran. Seed Zeolit-X memiliki ukuran partikel yang cukup besar dibuktikan dengan analisis PSA seed Zeolit-X didapatkan ukuran partikel 800 nm-5500 nm [23].

Zeolit-X dikarakterisasi menggunakan Fourier Transform Infrared (FTIR) untuk mengetahui gugus Si-Al pada zeolit-X. Gambar 6 menunjukkan puncak-puncak yang muncul mengindikasikan beberapa gugus fungsi 3340,17  $\text{cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur dari gugus OH yang menunjukkan adanya air dalam sampel dan diperkuat oleh puncak pada 1636,83  $\text{cm}^{-1}$  yang timbul akibat vibrasi tekuk gugus -OH [24].

Puncak pada 946,39  $\text{cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi asimetris T-O-T (T= Si atau Al) [25]. Vibrasi simetris dari hubungan O-T-O terjadi pada 742,33  $\text{cm}^{-1}$ , sedangkan vibrasi simetris karena getaran internal kerangka tetrahedral Zeolit-X terjadi pada 664,13  $\text{cm}^{-1}$ . Vibrasi terkait dengan enam cincin ganda (D6R) yang terhubung kandang sodalit terjadi pada 556,47  $\text{cm}^{-1}$ . Puncak 447,56  $\text{cm}^{-1}$  merupakan vibrasi internal karena lentur dari tetrahedral TO<sub>4</sub> [26]. Munculnya puncak-puncak khas tersebut menunjukkan terbentuknya zeolit-X hasil sintesis.

### C. Kinerja Membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang telah dipreparasi diuji permeasi gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> untuk mengetahui permeasi dan selektivitas dari membran Zeolit-X. Tekanan yang diberikan pada variasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> adalah 5 bar. Dari hasil permeasi dan selektivitas didapatkan yang paling optimal untuk dilakukan penelitian lebih lanjut atau untuk aplikasinya. Hasil uji permeasi dan selektivitas membran variasi membran zeolit-X sesuai Tabel 1.

Pada M1 didapatkan permeasi paling tinggi jika dibandingkan dengan membran lainnya. Permeasi membran alumina lebih cepat jika dibandingkan dengan membran zeolit [1], [6], [27]. Hipotesis yang terjadi adalah permeasi gas yang melewati M1 cenderung lebih cepat karena melewati pori alumina bukan melewati pori zeolit. Hal tersebut dikarenakan jumlah *vacuum seeding seed* zeolit yang terlalu rendah sehingga pori membran alumina yang dilapisi oleh Zeolit-X tidak seragam. Potensi gas melewati pori membran lebih besar daripada pori zeolit. M2 didapatkan permeasi diantara M1 dan M3. Namun memiliki nilai selektivitas yang lebih baik jika dibandingkan dengan membran lainnya.

M3 memiliki permeasi lebih lambat dari membran zeolit yang lain serta didapatkan selektivitas rendah. Hal tersebut dikarenakan banyaknya jumlah *vacuum seeding* yang dilakukan sehingga permeasi gas pada M3 cukup rendah jika dibandingkan dengan membran lain. Permeasi gas N<sub>2</sub> lebih cepat dari O<sub>2</sub> seperti pada Tabel 1 berat molekul O<sub>2</sub> lebih

besar dari N<sub>2</sub> sehingga permeasi O<sub>2</sub> akan lebih rendah daripada N<sub>2</sub> [13]. Permeasi gas pada membran zeolit terjadi mekanisme difusi permukaan karena zeolit dapat mengadsorpsi Nitrogen dan Oksigen [28]. Selain itu, zeolit memiliki diameter pori 0,74 nm yang termasuk < 2 nm (mikropori) yang dapat terjadi difusi permukaan. Namun, membran zeolit juga terdapat *defect* sehingga memungkinkan terjadi difusi Knudsen karena adanya celah antara zeolit dan membran alumina > 2 nm (mesopori). Difusi permukaan sering berjalan secara parallel dengan mekanisme transport lainnya [28].

Dari hasil uji permeasi tersebut didapatkan permeasi dan selektivitas terbaik pada M2. Namun masih ada *defect* pada membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sehingga diperlukan penelitian lebih lanjut untuk mendapatkan hasil maksimal. Preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> untuk permeasi gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> sangat jarang dilakukan. Oleh karena itu, dilakukan preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menggunakan metode *secondary growth*. Pada Tabel 2 merupakan perbandingan sifat permeasi dengan penelitian sebelumnya. Permeasi pada penelitian ini cukup tinggi jika dibandingkan dengan permeasi pada penelitian sebelumnya sehingga dapat digunakan untuk aplikasi berikutnya.

## IV. KESIMPULAN DAN SARAN

Hasil permeasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mengalami penurunan sesuai dengan banyaknya jumlah *vacuum seeding*. Kinerja membran dengan performa terbaik pada M2 dengan hasil permeasi pada N<sub>2</sub> adalah  $64,8 \times 10^{-9} \text{mol.m}^{-2}\text{s}^{-1}\text{Pa}^{-1}$  dan O<sub>2</sub> adalah  $54,5 \times 10^{-9} \text{mol.m}^{-2}\text{s}^{-1}\text{Pa}^{-1}$  dan selektivitasnya 0,84. Preparasi membran Zeolit-X/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bebas *defect* masih menjadi tantangan saat ini. Oleh karena itu, diperlukan penelitian lebih lanjut untuk mendapatkan membran zeolit bebas *defect*.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] X. Xu, W. Yang, J. Liu, and L. Lin, "Synthesis of a high-permeance NaA zeolite membrane by microwave heating," *Adv. Mater.*, vol. 12, no. 3, pp. 195–198, 2000.
- [2] A. Pantazidis, J. A. Dalmon, and C. Mirodatos, "Oxidative dehydrogenation of propane on catalytic membrane reactors," *Catal. today*, vol. 25, no. 3–4, pp. 403–408, 1995.
- [3] A. F. Ismail, K. C. Khulbe, and T. Matsuura, "Gas separation membranes," *Switz. Springer*, vol. 10, pp. 973–978, 2015.
- [4] I. G. Wenten, P. T. Dharmawijaya, P. T. P. Aryanti, R. R. Mukti, and others, "LTA zeolite membranes: current progress and challenges in pervaporation," *RSC Adv.*, vol. 7, no. 47, pp. 29520–29539, 2017.
- [5] M. Pera-Titus, R. Mallada, J. Llorens, F. Cunill, and J. Santamaría, "Preparation of inner-side tubular zeolite NaA membranes in a semi-continuous synthesis system," *J. Memb. Sci.*, vol. 278, no. 1–2, pp. 401–409, 2006.
- [6] C. Algieri, P. Bernardo, G. Barbieri, and E. Drioli, "A novel seeding procedure for preparing tubular NaY zeolite membranes," *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 119, no. 1–3, pp. 129–136, 2009.
- [7] A. Huang, Y. S. Lin, and W. Yang, "Synthesis and properties of A-type zeolite membranes by secondary growth method with vacuum seeding," *J. Memb. Sci.*, vol. 245, no. 1–2, pp. 41–51, 2004.
- [8] X. Gu, J. Dong, and T. M. Nenoff, "Synthesis of defect-free FAU-type zeolite membranes and separation for dry and moist CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixtures," *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 44, no. 4, pp. 937–944, 2005.
- [9] Y. Zhang, J. Sunarso, S. Liu, and R. Wang, "Current status and development of membranes for CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> separation: A review," *Int. J. Greenh. Gas Control*, vol. 12, pp. 84–107, 2013.
- [10] E. Hayakawa and S. Himeno, "Synthesis of all-silica ZSM-58 zeolite membranes for separation of CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> gas mixtures," *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 291, p. 109695, 2020.
- [11] R. Wang et al., "Highly stable La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3- $\delta$</sub>  hollow

- fibre membrane for air separation swept by steam or steam mixture,” *J. Memb. Sci.*, vol. 479, pp. 232–239, 2015, doi: 10.1016/j.memsci.2015.01.006.
- [12] A. Dos Santos Barbosa, A. Dos Santos Barbosa, T. L. A. Barbosa, and M. G. F. Rodrigues, “Synthesis of zeolite membrane (NaY/alumina): Effect of precursor of ceramic support and its application in the process of oil–water separation,” *Sep. Purif. Technol.*, vol. 200, pp. 141–154, 2018.
- [13] J. Zhou, C. Zhou, K. Xu, J. Caro, and A. Huang, “Seeding-free synthesis of large tubular zeolite FAU membranes for dewatering of dimethyl carbonate by pervaporation,” *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 292, p. 109713, 2020.
- [14] S. A. Younssi, M. Breida, B. Achiou, and others, *Alumina Membranes for Desalination and Water Treatment*, 1st ed. Maroko: IntechOpen, 2018.
- [15] Z. Shao and S. M. Haile, “A high-performance cathode for the next generation of solid-oxide fuel cells,” *Nature*, vol. 431, no. 7005, pp. 170–173, Sep. 2004, doi: 10.1038/nature02863.
- [16] V. H. Putranto, E. Kusumastuti, and J. Jumaeri, “Pemanfaatan Zeolit dari Abu Sekam Padi dengan Aktivasi Asam untuk Penurunan Kepadatan Air,” *J. Mipa*, vol. 38, no. 2, pp. 150–159, 2015.
- [17] J. Jumaeri, W. Astuti, and W. T. P. Lestari, “Preparasi dan karakterisasi zeolit dari abu layang batubara secara alkali hidrotermal,” *Reaktor*, vol. 11, no. 1, pp. 38–44, 2007.
- [18] K. Ojha, N. C. Pradhan, and A. N. Samanta, “Zeolite from fly ash: synthesis and characterization,” *Bull. Mater. Sci.*, vol. 27, no. 6, pp. 555–564, 2004.
- [19] M. Miyake, Y. Kimura, T. Ohashi, and M. Matsuda, “Preparation of activated carbon–zeolite composite materials from coal fly ash,” *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 112, no. 1–3, pp. 170–177, 2008.
- [20] G.-T. Zhu, X.-L. Hu, S. He, X.-M. He, S.-K. Zhu, and Y.-Q. Feng, “Hydrothermally tailor-made chitosan fiber for micro-solid phase extraction of petroleum acids in crude oils,” *J. Chromatogr. A*, vol. 1564, pp. 42–50, 2018.
- [21] S. Bohra, D. Kundu, and M. K. Naskar, “One-pot synthesis of NaA and NaP zeolite powders using agro-waste material and other low cost organic-free precursors,” *Ceram. Int.*, vol. 40, no. 1, pp. 1229–1234, 2014.
- [22] M. M. J. Treacy and J. B. Higgins, *Collection of Simulated XRD Powder Patterns for Zeolites Fifth (5th) Revised Edition*, 5th ed. United States of America: Elsevier, 2007.
- [23] H. J. Lee, Y. M. Kim, O. S. Kweon, and I. J. Kim, “Structural and morphological transformation of NaX zeolite crystals at high temperature,” *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 27, no. 2–3, pp. 561–564, 2007.
- [24] L. S. M. Nazir, Y. F. Yeong, and T. L. Chew, “Methods and synthesis parameters affecting the formation of FAU type zeolite membrane and its separation performance: a review,” *J. Asian Ceram. Soc.*, vol. 8, no. 3, pp. 553–571, 2020.
- [25] J. Jumaeri, S. Wardani, and others, “Sintesis dan karakterisasi zeolit X dari abu sekam padi melalui proses hidrotermal,” *Indones. J. Chem. Sci.*, vol. 7, no. 1, pp. 17–20, 2018.
- [26] S. Manadee, N. Supamathanon, S. Prayoonpokarach, and J. Wittayakun, “Catalyst preparation by addition of K and Na on zeolite NaX for transesterification of jatropha seed oil,” in *Asian Conference on Sustainability Energy, and the Environment*, 2012, pp. 400–412.
- [27] B. Kwakye-Awuah, E. Von-Kiti, I. Nkrumah, R. Erdoo Ikyreve, I. Radecka, and C. Williams, “Parametric, equilibrium, and kinetic study of the removal of salt ions from Ghanaian seawater by adsorption onto zeolite X,” *Desalin. Water Treat.*, vol. 57, no. 45, pp. 21654–21663, 2016.
- [28] X. Chen, W. Yang, J. Liu, X. Xu, A. Huang, and L. Lin, “Synthesis of NaA zeolite membrane with high performance,” *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 21, no. 13, pp. 1023–1025, 2002.