



## PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI *SUPPORT LAYER* UNTUK MEMBRAN PERVAPORASI

Ariestya Meta Devi, Lulluil Mahsunah, Heru Susanto<sup>\*)</sup>

Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro  
Jalan Prof. Soedarto, SH. Semarang, 50239, Telp/Fax: (024)7460058

### Abstrak

Pemilihan jenis membran memiliki peran penting dalam proses pervaporasi berdasarkan kelebihan dan kekurangan membran untuk dipakai pada proses pemisahan. Pada proses pemisahan dengan konsentrasi air rendah dan membutuhkan kondisi pemisahan yang khusus, membran anorganik merupakan pilihan yang tepat. Penelitian ini secara khusus bertujuan untuk menentukan komposisi preparasi *support* yang optimal untuk pembuatan membran zeolit. Hasil penelitian menunjukkan *support* membran dengan perbandingan komposisi alumina : kaolin = 56%wt : 34%wt memiliki kekuatan yang paling tinggi yaitu 46,65 N/mm<sup>2</sup> dan 30,24 N/mm<sup>2</sup> bila dibandingkan dengan perbandingan komposisi alumina : kaolin = 45%wt : 45%wt dan 34%wt : 56%wt. Kemudian dilakukan studi deposisi zeolit pada lapisan *support*. Berdasarkan hasil identifikasi fase yang terbentuk dengan menggunakan XRD didapat fase mullite (Al<sub>6</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>13</sub>, *Aluminium silicate*) sebagai fase dominan yang terbentuk dengan ukuran kristal yaitu 3,16 – 7,25 nm. Berdasarkan hasil analisa menggunakan SEM didapat permukaan *support* yang telah terdeposisi menjadi lebih rapat, namun kristal zeolit yang terbentuk belum membentuk ikatan antar zeolitnya.

**Kata Kunci:** deposisi zeolit, pervaporasi, support layer, membran, zeolit.

### Abstract

The selection of the membrane has an important role in the process of pervaporation membranes based on the advantages and disadvantages for use in the separation process.. In the separation process of water with low concentration and need a specific condition, anorganic membrane is suitable. The purpose of this research is to find the optimal composition of support for the preparation of zeolite membranes. The result of the research shown the support membrane with composition alumina : kaolin 56%wt : 34%wt has a highest strength 46,65 N/mm<sup>2</sup> and 30,24 N/mm<sup>2</sup> if it compare with composition of alumina : kaolin 45%wt : 45%wt and 34%wt : 56%wt. And then the support layer is depositioned by zeolite. As an identification result from XRD, it shown mullite as dominant phase that formed with crystal size range 3,16 – 7,25 nm. Based on the analysis results obtained using the SEM support surface which has been deposited into closer, but the zeolite crystals have not formed a bond that forms between each zeolite.

**Keywords:** zeolite deposition; pervaporation; support layers; membranes; zeolite

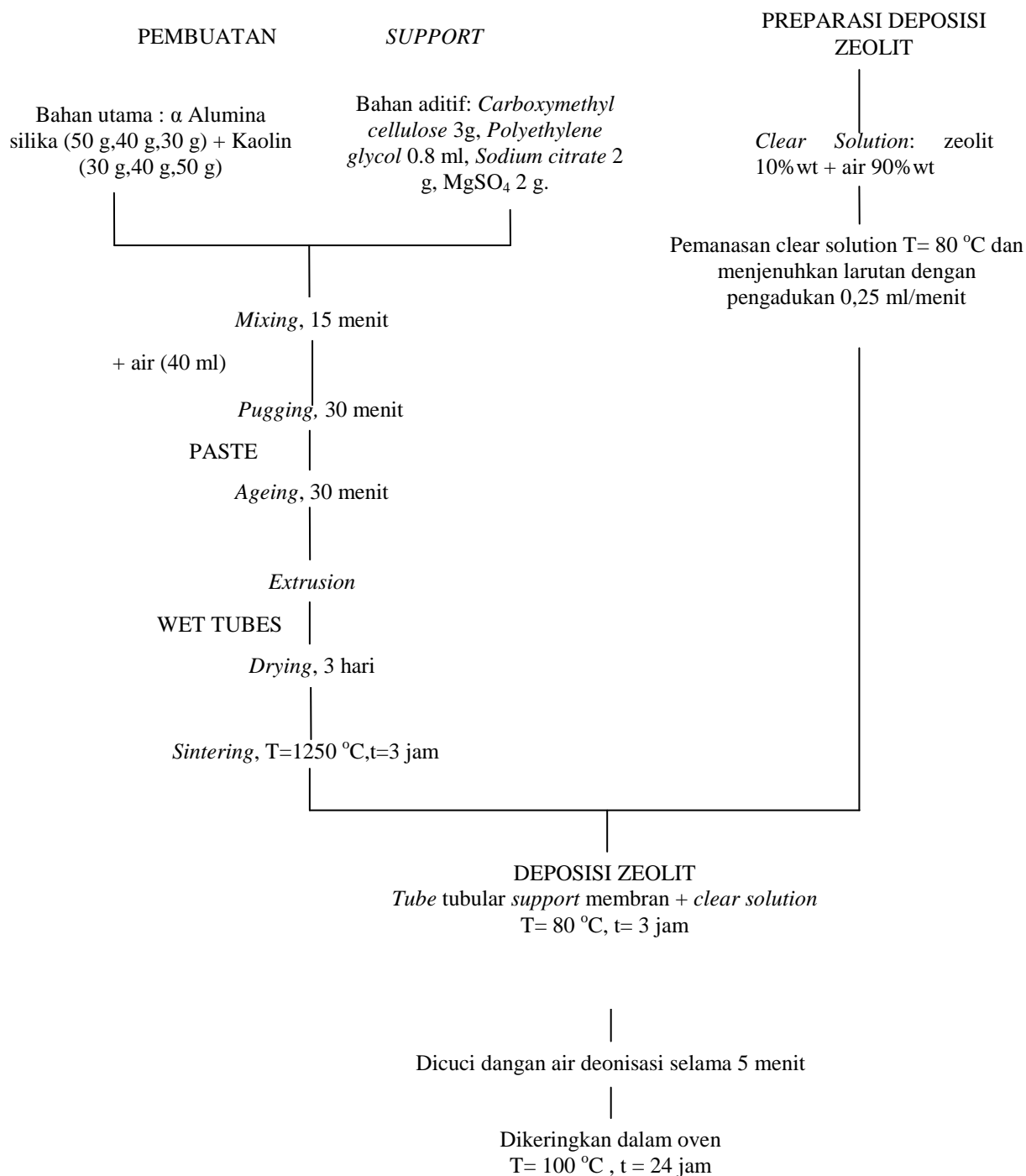
### 1. Pendahuluan

Krisis energi saat ini menyebabkan manusia beralih pola pikir untuk lebih mengintensifkan penggunaan energi terbarukan. Salah satunya dengan penggunaan bioetanol sebagai bahan bakar yang harus memiliki kemurnian diatas 99,5% wt. Salah satu metode yang digunakan untuk pemurnian bioetanol dapat dilakukan dengan penggunaan membran anorganik. Membran anorganik yang umum digunakan yaitu membran zeolit dengan campuran alumina atau silika. Membran zeolit memiliki beberapa kelebihan diantaranya tidak menimbulkan *swelling*, memiliki struktur molekul seragam, molekul berukuran pori-pori, bersifat stabil pada proses kimiawi dan termal. Zeolit sebagai bahan baku membran memiliki kemampuan adsorpsi dan pemisahan molekuler yang sangat selektif. Komponen utama pada membran zeolit terdiri dari *tubular support* dan zeolit sebagai pelapisnya. Pada penelitian ini akan dibuat *support* membran dengan variabel perbandingan komposisi bahan baku alumina kaolin dan mengetahui pengaruhnya terhadap kekuatan *support layer*.

<sup>\*)</sup> Penulis Penanggung Jawab (Email: [susanto.heru@gmail.com](mailto:susanto.heru@gmail.com))

**2. Metode Penelitian**

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain:  $\alpha$  alumina, kaolin, *carboxymethyl cellulose*, *polyethylene glycol*, *sodium citrate*,  $MgSO_4$ , dan air. Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah timbangan, wadah pencampur, *extruder*, *furnace*, dan rangkaian alat deposisi zeolit. Dalam penelitian ini digunakan variabel berubah perbandingan komposisi alumina : kaolin pada *support* dengan perbandingan 56%wt:34% wt ; 45%wt:45%wt; 34%wt:56%wt. Dari hasil pembuatan *support*, selanjutnya akan dilakukan uji kekuatan mekanik dari masing-masing sampel, serta dilakukan karakterisasi menggunakan XRD dan SEM. Langkah-langkah percobaan dibagi menjadi 2 tahap yaitu pertama pembuatan *support* membran zeolit dan kedua tahap deposisi zeolit.



Gambar 1. Tahap pembuatan membran zeolit

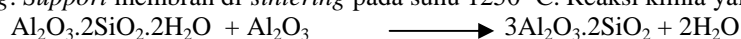
### 3. Hasil dan Pembahasan

Analisa Sifat Mekanik dan Kimia Hasil Pembuatan Membran  
Sifat Mekanik

Tabel 1. Hasil Uji Kekuatan Mekanik

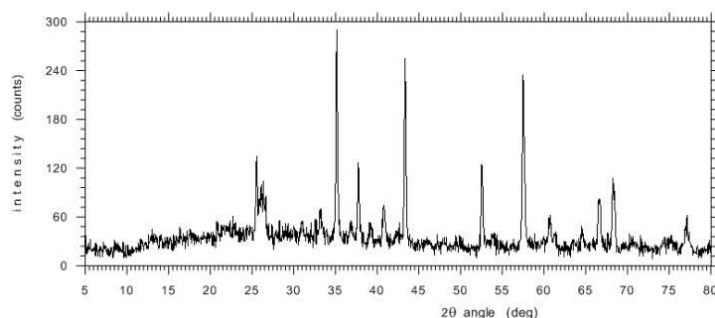
No	Kode Benda Uji	Luas (mm <sup>2</sup> )	Tekanan Maks	Kokoh Tekan (N/mm <sup>2</sup> )
1	Sampel A1	400	18660.22	46.65
2	Sampel A2	400	12097.12	30.24
3	Sampel B1	400	6635.69	16.59
4	Sampel B2	400	7400.04	18.50
5	Sampel C1	400	4043.76	10.11
6	Sampel C2	400	4961.82	12.40

*Support* membran merupakan bahan keramik yang dibuat melalui pembakaran suhu tinggi. Dalam tahap perlakuan panas, terjadi peristiwa kimia antara lain: pengeringan, penguapan air kristal, penguapan aditif dan penguapan impuritas. Bersamaan dengan terjadinya reaksi kimia, terjadi pula perubahan fisis yaitu yang disebut *sintering*. *Support* membran di-*sintering* pada suhu 1250 °C. Reaksi kimia yang terjadi sebagai berikut:

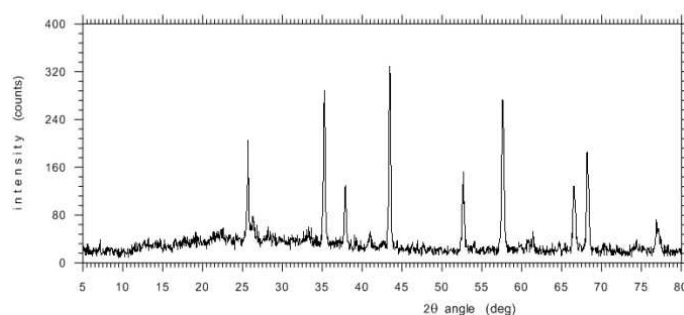


*Mullite* merupakan suatu senyawa yang sangat stabil, sehingga dapat dikatakan pembentukan *mullite* ini merupakan tujuan dari pembakaran keramik, karena dengan adanya *mullite* ini, akan memiliki sifat keras, kompak dan padat. Dari ketiga sampel uji di atas disimpulkan sampel A dengan komposisi alumina : kaolin = 56% wt : 34% wt merupakan *support* membran yang paling layak digunakan karena kekuatannya paling kuat dari ketiga sampel.

#### Sifat Kimia dari Hasil Analisa XRD



Gambar 2. Pola Difraksi Sampel A



Gambar 3. Pola Difraksi Sampel C

Analisis hasil difraksi sinar-X dilakukan dengan metode Hanawalt dengan menggunakan *Data Base JCPDS (Joint Committee Powder Diffraction Standard)*. Pada sampel A, fase *corundum* ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ , *Aluminium oxide*) yang terbentuk, puncak terlihat pada sudut  $2\theta$  : 35,255 ; 37,873 ; 43,451 ; 53,97 ; 57,598 ; 64,675 ; 66,531 ; 68,227 ; 76,902. Sedangkan fase *mullite* ( $\text{Al}_6\text{Si}_2\text{O}_{13}$ , *Aluminium silicate*) yang terbentuk, puncak terlihat pada sudut  $2\theta$  : 12,68 ; 25,679 ; 33,314 ; 35,255 ; 40,992 ; 61,424. Pada sampel C fase *corundum* yang terbentuk muncul pada

puncak dengan sudut  $2\theta$  : 22,778 ; 24,451 ; 35,141 ; 36,781 ; 37,745 ; 43,345 ; 57,496 ; 76,996. Sedangkan fase *mullite* ( $Al_6Si_2O_{13}$ , *Aluminium silicate*) yang terbentuk muncul pada puncak dengan sudut  $2\theta$  : 12,975 ; 25,549 ; 26,108 ; 33,196 ; 42,298 ; 60,642 ; 61,260.

Sampel	Fase <i>Corundum</i> ( $Al_2O_3$ , <i>Aluminium oxide</i> )			Fase <i>Mullite</i> ( $Al_6Si_2O_{13}$ , <i>Aluminium silicate</i> )		
	$2\theta$	FWHM	Ukuran kristal (nm)	$2\theta$	FWHM	Ukuran kristal (nm)
1. Sampel B	22,778	0,5	3,009	12,975	0,5	2,848
	24,451	0,7	2,17	25,549	0,45	3,418
	35,141	0,5	3,394	26,108	0,7	2,207
	36,781	0,5	3,465	33,196	0,45	3,685
	37,745	0,5	3,509	42,298	0,55	3,410
	43,345	0,45	4,24	60,642	0,45	6,289
	57,496	0,5	5,16	61,260	0,35	8,245
	76,995	0,5	12,33			

**Ukuran Kristal**

Ukuran kristal dihitung dengan menggunakan persamaan *Scherrer* dengan analisa FWHM (*Full Width Half Maximum*)

Sampel	Fase <i>Corundum</i> ( $Al_2O_3$ , <i>Aluminium oxide</i> )			Fase <i>Mullite</i> ( $Al_6Si_2O_{13}$ , <i>Aluminium silicate</i> )		
	$2\theta$	FWHM	Ukuran kristal (nm)	$2\theta$	FWHM	Ukuran kristal (nm)
2. Sampel A	35,255	0,5	3,398	12,68	0,45	3,16
	37,873	0,45	3,906	25,679	0,45	3,42
	43,451	0,5	3,823	33,314	0,6	2,76
	53,973	0,4	5,897	35,255	0,5	3,39
	57,598	0,5	5,179	40,992	0,5	3,67
	64,675	0,4	8,109	61,424	0,4	7,25
	66,531	0,5	6,96			
	68,227	0,45	8,31			
	76,902	0,5	12,246			

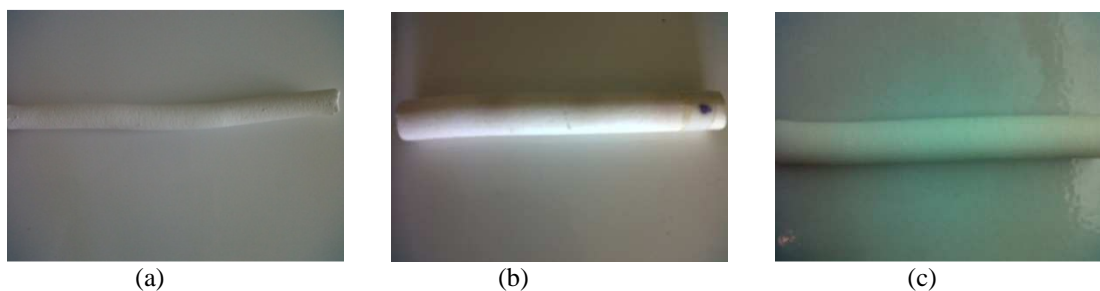
Pada sampel A rata-rata memiliki ukuran 3,398 – 12,246 nm untuk fase *corundum*, ( $Al_2O_3$ , *Aluminium oxide*). Untuk fase *mullite* ( $Al_6Si_2O_{13}$ , *Aluminium silicate*) memiliki ukuran kristal antara 3,16 – 7,25 nm . Pada sampel C rata-rata memiliki ukuran 2,17 – 12,33 nm untuk fase *corundum* ( $Al_2O_3$ , *Aluminium oxide*). Untuk fase *mullite* ( $Al_6Si_2O_{13}$ , *Aluminium silicate*) memiliki ukuran kristal antara 2,207 – 8,245 nm. Fenomena yang sama terjadi untuk kedua sampel dimana kristal fase *mullite* yang lebih dominan tersebar pada *support layer* dibandingkan dengan fase *corundum* ( $Al_2O_3$ , *Aluminium oxide*).

**Penampakan Fisik Membran Zeolit yang Terbentuk**

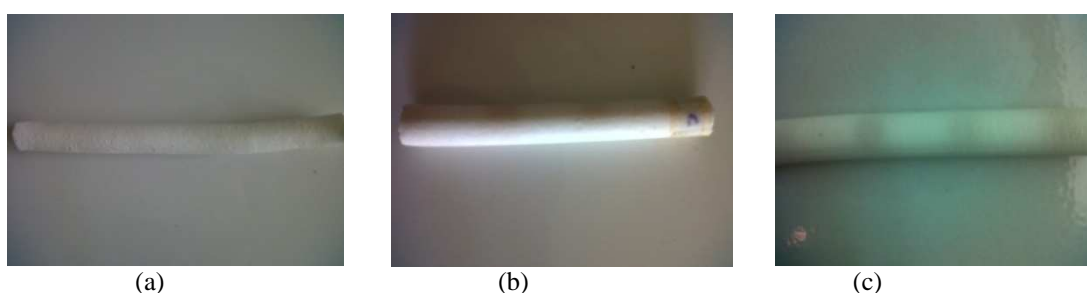


(a) (b) (c)

**Gambar 4.** *Support* sampel A setelah di *drying* (a), *Support* sampel A setelah dideposisi (b), *Support* sampel A setelah di *furnace* (c).

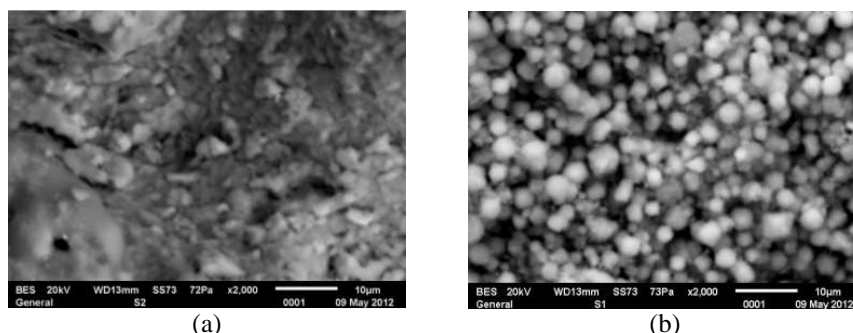


**Gambar 5.** *Support* sampel B setelah di *drying* (a), *Support* sampel B setelah dideposisi (b), *Support* sampel B setelah di *furnace* (c).



**Gambar 6.** *Support* sampel C setelah di *drying* (a), *Support* sampel B setelah dideposisi (b), *Support* sampel C setelah di *furnace* (c).

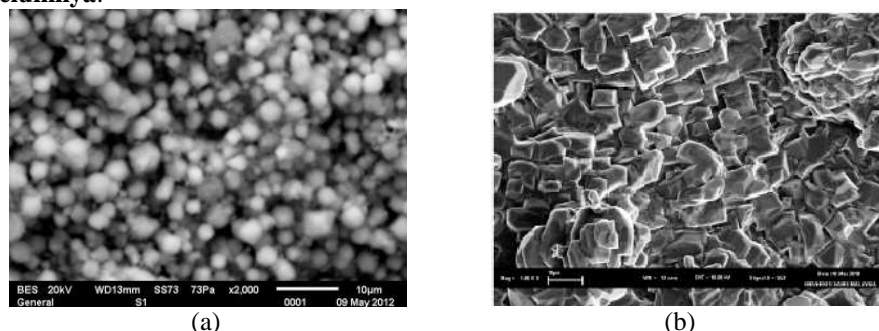
**Hasil Analisa SEM**



**Gambar 7.** (a) *Support* membran *top view* dengan perbesaran 2000 kali (b) Membran zeolit *top view* perbesaran 2000 kali

Dari gambar 7 (a) dapat diamati permukaan *support layer* yang *support layer* zeolit ditutupi oleh ikatan alumina yang berasal dari  $\alpha$ -alumina dan kaolin secara tidak teratur. Ketidakteraturan ikatan yang terbentuk mengakibatkan adanya pori-pori pada permukaan *support layer*. Sedangkan dari gambar 7 (b) memperlihatkan permukaan *support layer* telah terlapisi kristal zeolit 4A. Dengan menempelnya zeolit maka pori-pori yang ada pada *support layer* tertutupi oleh zeolit sehingga permukaan membran lebih rapat.

**Perbandingan permukaan membran zeolit dari penelitian yang dilakukan dengan permukaan zeolit dari penelitian sebelumnya.**



**Gambar 8.** (a) Membran zeolit *top view* hasil penelitian yang dilakukan (b) Membran zeolit *top view* hasil penelitian sebelumnya (Wee Shin Ling, 2010)

Gambar 8 (b) merupakan hasil analisis SEM membran zeolit A yang dilakukan oleh Wee Shin Ling, Tye Ching Thian, Subhash Bhatia pada tahun 2010. Dimana terlihat adanya ikatan dari kristal-kristal zeolit yang terbentuk menutupi *support layer*. Jika dibandingkan dengan hasil deposisi zeolit yang telah dilakukan (gambar 8 (a)), zeolit 4A yang ada pada permukaan *support layer* sudah membentuk kristal zeolit dengan bentuk kubus, (Christian, 2007). Namun kristal zeolit yang terbentuk belum optimal, terlihat dari gambar 8 (a) penyebaran kristal zeolit tidak merata pada keseluruhan permukaan membran sehingga masih terdapat rongga-rongga dan memperlihatkan juga belum adanya ikatan antar kristal zeolit. Hal ini dikarenakan proses kristalisasi pada deposisi zeolit belum mencapai kondisi yang optimal.

#### 4. Kesimpulan

Berdasarkan sifat kimia, sampel A memiliki struktur kimia yang sama dengan sampel C. Namun berdasarkan sifat mekanik didapatkan bahwa kekuatan mekanik sampel A memiliki kekuatan mekanik paling besar. Dari hasil karakterisasi sampel A dan sampel C menggunakan XRD didapat: fase yang terbentuk untuk sampel A dan sampel C yaitu fase *corundum* ( $Al_2O_3$ , *Aluminium oxide*) dan fase *mullite* ( $Al_6Si_2O_{13}$ , *Aluminium dilicate*). Fase yang dominan yaitu fase *mullite*. Hasil lain yang didapatkan yaitu pada permukaan *support* membran yang telah dideposisi oleh zeolit telah terlapisi kristal zeolit sehingga permukaan membran lebih rapat. Namun kristal zeolit yang terbentuk pada permukaan *support* membran belum membentuk ikatan antar kristal zeolit.

#### Ucapan Terima Kasih

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Laboratorium Separasi atas kontribusinya sebagai tempat penelitian ini.

#### DAFTAR PUSTAKA

- Aguado, S., Gascón, Jorge., Jansen, Jacobus C., Kapteijn, Freek., *Continuous Synthesis of NaA Zeolite Membranes*, Elsevier, 2008, pp. 170–176.
- Astuti, Ambar. 1997. “*Pengetahuan Keramik*.” Cetakan Pertama, Universitas Gajah Mada : Bogor.
- Baerlocher, C., McCusker, Lynne B., *Atlas of Zeolite Framework Type*, Elsevier, Switzerland, 2007, pp. 194–195.
- Bouzerara, F., Harabi, A., Achour, S., Larbot, A., *Porous Ceramic Support for Membrane Prepared*, Elsevier, 2006, pp. 1663-1667.
- Huang, A., Yang, W., *Hydrothermal Synthesis of Uniform and Dense NaA Zeolite Membrane in The Electric Field*, Elsevier, 2007, pp. 58–69.
- Kazemimoghadam, M., Mohammadi, T., *The Pilot-scale Pervaporation Plant Using Tubular-type Module with Nano Pore Zeolite Membrane*, Elsevier, 2010, pp. 196–200.
- LingWee, S., Thian Tye, C., Bhatia, S., *Membrane Separation Process—Pervaporation through Zeolite Membrane*, Elsevier, 2008, pp. 500–516.
- LingWee, S., Thian Tye, C., Bhatia, S., *Synthesis, characterization and pervaporation properties of microwave synthesized zeolite A membrane*, Elsevier, 2011, pp. 383–389.
- Mallada, R., Mene'ndez, M., *Inorganic Membranes: Synthesis, Characterization and Applications*, 1<sup>st</sup> ed., Elsevier, Amsterdam, 2008, pp. 121-160.
- Mirfendereski, S.M., Daneshpour, R., Mohammadi, T., *Synthesis and Characterization of T-type Zeolite Membrane on A Porous Mullite Tube*, Elsevier, 2006, pp. 77–79.
- Porter, M., *Handbook of Industrial Membrane*, Noyes Publications, New Jersey, pp. 1-53.
- Ramlan, A., Akhmad. 2011, *Pengaruh Suhu dan Waktu Sintering terhadap Sifat Bahan Porselen untuk Bahan Elektrolit Padat*, Universitas Sriwijaya, Lampung.
- Rakhmatullah, D.K.A., Wiradini, G., Ariyanto, N.P., 2007. *Pembuatan Adsorben Dari Zeolit Alam dengan Karakteristik Adsorpyion Properties untuk Pemurnian Bioetanol* di Institut Teknologi Bandung, Program Studi Teknik Fisika: Laporan Akhir Penelitian Bidang Energi. Skripsi tidak diterbitkan. Bandung: ITB.
- Reed, J.S., *Principles of Ceramics Processing*, John Wiley & Sons, Inc. New York, 1995, pp. 135-227.
- Republik Indonesia. 2008. Keputusan Direktur Jenderal Minyak dan Gas Bumi Nomor: 23204.K/10/DJM.S/2008 tentang *Standard dan Mutu (Spesifikasi) Bahan Bakar nabati (Biofuel)*

*Jenis Bioetanol Sebagai Bahan Bakar Lain yang Dipasarkan di Dalam Negeri.* Departemen Energi dan Sumber Daya Mineral Republik Indonesia Direktorat Jenderal Minyak Bumi dan Gas Bumi. Jakarta.

Ribeiro, M.J., Ferreira, J.M., Labrincha, J.A., *Plastic Behaviour of Different Ceramic Pastes Processed by Extrusion*, Elsevier, 2005, pp 515-519.

Suhala, S., dan Arifin M., 1997, "*Bahan Galian Industri*", Pusat Pengembangan Teknologi Mineral, Bandung.

Sutarti, M. dan Rahmawati, M., 1994, "*Zeolit Tinjauan Literatur*", Edisi Kesatu, Pusat Dokumentasi dan Informasi Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia, Jakarta.