

SINTESIS ZEOLIT CHABAZITE DENGAN RASIO Si/Al TINGGI TANPA MENGGUNAKAN SENYAWA ORGANIK

Iftitah R Kadir^{1,a}, Grandprix T.M Kadja^{2,b}, Rino R Mukti^{3,c}

¹ Fakultas Teknik, Universitas Nurtanio

^{2,3} FMIPA, Institut Teknologi Bandung

e-mail: iftitahkadir@gmail.com

Abstrak

Zeolit tipe Chabazite (CHA) merupakan material bermikropori dengan 8 saluran cincin yang memiliki potensi besar untuk diaplikasikan sebagai katalis pada reaksi MTO (Methanol to Olefins). Umumnya zeolite tipe CHA dengan kadar silika tinggi bersifat hidrofobik dan disintesis menggunakan bantuan senyawa organik N,N,N-Trimethyl-1-adamanammonium hydroxide (TMAdaOH) sebagai pengarah struktur (Structure Directing Agent, SDA). Akan tetapi penggunaan SDA terutama TMAdaOH sangat tidak ekonomis dan tidak ramah bagi lingkungan. Untuk membuka pori zeolit, senyawa organik ini harus dihilangkan dengan pembakaran suhu tinggi. Pada tahap awal penelitian ini, CHA disintesis melalui transformasi interzeolit FAU (Faujasite) menjadi CHA, namun produk yang dihasilkan memiliki kadar silika rendah ($Si/Al = 2$), sehingga kami merancang proses sintesis CHA baru tanpa SDA dengan mereaksikan kembali produk CHA hasil inter-transformasi dengan penambahan sumber silika, alumina, NaOH, dan KOH. Metode hidrotermal diterapkan pada campuran ini dengan menggunakan suhu 170 °C selama 24 jam. Variasi komposisi molar Na₂O dan K₂O dengan kisaran 0.1 hingga 0.4 dilakukan untuk mempelajari pengaruh sinergis Na⁺ dan K⁺ terhadap kristalisasi zeolit tipe CHA dengan rasio Si/Al tinggi. Hasil analisis difraksi sinar-X (XRD) menunjukkan zeolit tipe CHA dapat dihasilkan kembali dan fluoresensi sinar-X (XRF) menunjukkan produk ini mempunyai rasio Si/Al=4 dari perbandingan Na₂O dan K₂O berturut-turut adalah 0,3 dan 0,1. Selanjutnya citra mikroskop pemindai electron (SEM) memperlihatkan morfologi dan ukuran partikel produk yang sama dengan morfologi dan ukuran kristal CHA hasil inter-transformasi.

Kata kunci: Chabazite, Faujasite, inter-transformasi, sintesis tanpa senyawa organik,

Abstract

Chabazite (CHA) type zeolite is a microporous material with 8 channel rings that has great potential to be applied as a catalyst in MTO (Methanol to Olefins) reaction. Generally high silica CHA with high levels of high silica is hydrophobic and synthesized using the help of

organic compounds N,N,N-Trimethyl-1-adamanammonium hydroxide (TMAdaOH) as a structure directing Agent (SDA). However, the use of natural resources, especially TMAdaOH is very costly and is not environmentally friendly. To open the pores of the zeolite, this organic compound must be removed by high temperature combustion. In the early stages of this research, CHA was synthesized through FAU to CHA interzeolite transformation. However the products has low silica content (Si/Al mole ratio = 2). Therefore we designed new synthesis route of CHA without SDA by reacting the products of inter-transformation process with additional silica and alumina precursors, NaOH, and KOH. Hydrothermal treatment is then applied to this mixture at 170 °C for 24 hours. Various molar composition of Na₂O and K₂O (0.1 to 0.4) was conducted to study the synergistic effect of Na⁺ and K⁺ to the crystallization of CHA with high Si/Al ratio. X-ray diffraction (XRD) analysis showed that CHA-type zeolite can be regenerated and X-ray fluorescence (XRF) measurement showed that Si/Al ratio of = 4 was produced by applying two molar composition of Na₂O and K₂O respectively 0.3 and 0.1. Scanning Electron Microscope (SEM) images of the product showed similar morphology and particle size to those of inter-transformation CHA crystal.

Keywords: Chabazite, Faujasite, interzeolite-transformation, synthesis without organic compound

PENDAHULUAN

Zeolit adalah material kristalin aluminosilikat tetrahedrat berpori yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi, dibangun oleh unit tetrahedral Si atau Al (TiO₄, T = Si atau Al). Material ini memiliki sifat yang unik, karena mempunyai banyak tipe kerangka dan dapat diaplikasikan dengan fungsi yang berbeda. Hingga hari ini, lebih dari 200 tipe kerangka zeolit telah ditemukan dan diaplikasikan di berbagai bidang (*International Zeolite Association, IZA*).

Zeolit *Chabazite* adalah salah satu tipe zeolit dengan sistem pori kerangka yang terhubung secara 3-dimensi dengan 8-cincin terbuka (Imai, dkk, 2014). Material ini memiliki selektifitas yang tinggi sebagai penyaring molekul, dan memiliki potensi besar untuk diaplikasikan sebagai katalis dalam reaksi MTO (*Methanol to Olefins*). Rasio Si/Al dari

zeolit CHA adalah salah satu faktor penentu yang mempengaruhi aktivitas katalis dari zeolit CHA. Kenaikan rasio Si/Al akan menyebabkan CHA bersifat hidrofobik, lebih stabil secara termal, dan memiliki umur yang lebih panjang sebagai katalis. Sebaliknya, jika rasio Si/Al rendah maka kandungan Al dalam kerangka zeolit akan semakin tinggi, hal ini menyebabkan banyaknya situs asam bronsted, keasaman yang kuat tersebut akan menyebabkan pembentukan kokas (*cokes*) yang nantinya dapat menutup situs aktif zeolit sehingga aktivitas dan reusabilitas katalis dapat menurun secara drastis.

Zeolit CHA dengan kadar silika tinggi disintesis dengan bantuan senyawa organik *N,N,N-Trimethyl-1-adamantammonium hydroxide* (TMAdaOH) sebagai pengarah struktur (*Structure Directing Agent, SDA*) (Itakura, dkk. 2011). Namun penggunaan

SDA terutama TMA₂O sangat tidak ekonomis dan tidak ramah lingkungan. Pada tahap akhir sintesis, senyawa organik ini harus didekomposisi terlebih dahulu dengan pembakaran pada suhu tinggi untuk membuka pori zeolit. Pembakaran tersebut akan menyebabkan emisi karbon, dan jika pembakaran tidak sempurna akan memungkinkan terbentuknya kokas yang dapat menutup siklus aktif zeolite dan mengganggu aktivitas katalitis material.

Beberapa penelitian sebelumnya telah melaporkan metoda sintesis zeolit CHA secara langsung dengan bantuan benih (Imai dkk, 2014). Laporan tersebut menunjukkan produk zeolit CHA yang dihasilkan memiliki rasio Si/Al tinggi, akan tetapi, benih yang digunakan tetap disintesis terlebih dahulu dengan menggunakan senyawa organik TMA₂O sebagai pengarah struktur.

Metode sintesis lain juga diperkenalkan oleh Zones, dkk pada tahun 1968. Mereka berhasil menyintesis zeolit CHA tanpa menggunakan SDA dengan cara menginter-transformasi zeolit FAU (*Faujasite*) menjadi zeolit CHA. Inter-transformasi ini didasarkan pada kesamaan unit kerangka pembangun (*Composite Building Units, CBU*) kedua zeolit. Semakin banyak CBU yang sama maka akan semakin mungkin zeolit tersebut untuk diinter-transformasi. Namun, produk zeolit CHA yang disintesis dengan metoda ini memiliki rasio Si/Al yang rendah. Untuk meningkatkan rasio Si/Al metode ini tetap dikombinasikan dengan penggunaan SDA (Itakura dkk, 2008) ataupun dengan bantuan benih, dimana benih tersebut tetap disintesis dengan bantuan senyawa organik (Zones dkk, 1991 dan Itakura dkk, 2011).

Berdasarkan penjabaran diatas, kami mencoba merancang sintesis zeolit CHA dengan rasio Si/Al tinggi tanpa menggunakan senyawa organik.

ALAT DAN BAHAN

Peralatan yang digunakan dalam sintesis zeolit ini adalah seperangkat alat gelas yaitu : gelas kimia (Iwaki Pyrex), gelas ukur (Iwaki Pyrex), labu ukur (Iwaki Pyrex), cawan penguap, batang pengaduk, dan pipet tetes. Selain itu juga digunakan beberapa peralatan non gelas yaitu: pengaduk magnetik (IKA), botol propilen (Kartell), corong *Buchner*, pompa vakum, oven (*Memmer*), tungku (*Thermolyne 48000*), teflon dan *autoclave*. Peralatan yang digunakan untuk karekterisasi produk diantaranya: *X-Ray Diffraction* (XRD), *X-Ray Fluorescence* (XRF), dan *Scanning Electron Microscope* (SEM).

Bahan-bahan yang digunakan untuk sintesis zeolit pada penelitian ini adalah Ludox HS-40 (Sigma-Aldrich) dan Cab-O-Sil (sebagai sumber silika), natrium aluminat (Sigma-Aldrich), natrium hidroksida 50% (w/w) (Merck), kalium hidroksida 47% (w/w) (Merck), ammonium nitrat (Merck), dan *Aqua DM*.

METODE

Terdapat 3 (tiga) tahapan dalam penelitian ini meliputi :

1. Sintesis zeolit tipe Faujasite (FAU)

Faujasite (FAU) disintesis pada suhu 170 °C dengan metode hidrotermal. Zeolit ini digunakan sebagai zeolit induk pada tahapan ke-2.

Zeolite tipe FAU disintesis dengan perbandingan komposisi 13 Na₂O : Al₂O₃ :

28,2 SiO₂ : 471 H₂O (Breck, D.W, *et. al.* 1964) dengan menggunakan LUDOX dan Natrium aluminat berturut-turut sebagai sumber silika dan alumina. Sintesis dimulai dengan melarutkan 6,37 g NaOH 50% dalam 15,148 g aqua DM. Kedalam larutan tersebut dicampurkan 0,506 g NaAlO₂ dan 13,065 g LUDOX kemudian diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 1 jam. Gel yang terbentuk setelah pengadukan dipindahkan kedalam teflon lalu kedalam *autoclave* ukuran 50 mL dan dimasukkan kedalam oven pada suhu 100 °C selama 21 jam. Campuran dua fasa yang dihasilkan dipisahkan menggunakan corong *Buchner* dan pompa vakum. Fasa padat dicuci dan dikeringkan pada suhu 80 °C selama 3-4 jam. Padatan yang sudah kering digerus kemudian digunakan untuk tahapan sintesis selanjutnya.

2. Inter-transformasi zeolit FAU menjadi zeolit *chabazite* (CHA)

Zeolit FAU yang dihasilkan pada tahap pertama dijadikan sebagai induk zeolit untuk mesintesis zeolit CHA. Sintesis ini dilakukan tanpa menggunakan senyawa organik pada suhu rendah (90 °C).

Sebelum inter-transformasi dilakukan, zeolit FAU yang telah disintesis diprotonasi untuk mengaktivasi zeolit. Protonasi dilakukan dengan mencampurkan 4 g zeolit FAU dalam 50 mL NH₄NO₃ 1 M kemudian diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 24 jam. Setelah pengadukan, campuran disaring, dikeringkan dan dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 2 jam.

Zeolit CHA disintesis menggunakan metode inter-transformasi dengan mencampurkan 2,494 g KOH 47%, 13,342 g

H₂O, dan 1,6 g zeolit FAU yang telah diprotonasi kedalam sebuah botol propilen. Campuran diaduk (*shake*) selama 30 detik dan dipanaskan dengan suhu 95 °C selama 96 jam. Endapan yang terbentuk dicuci, disaring dan dikeringkan selama 3-4 jam pada suhu 110 °C. Sintesis selanjutnya dilakukan dengan memvariasikan komposisi 100% KOH : 0% NaOH dan 0% KOH : 100% NaOH.

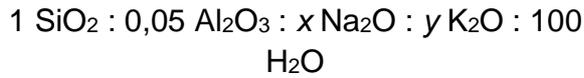
Tabel 1. Perbandingan komposisi molar

| No | Label Sampel | Keterangan | | Perbandingan komposisi (g) FAU : KOH : NaOH : H ₂ O |
|----|--------------|----------------------|-----------------------|---|
| | | K ₂ O (%) | Na ₂ O (%) | |
| 1 | A | 100 | 0 | 1,6 : 2,494 : 0 : 13,142 |
| 2 | B | 70 | 0 | 1,6 : 1,746 : 0 : 13,387 |
| 3 | C | 50 | 0 | 1,6 : 1,247 : 0 : 13,417 |
| 4 | D | 30 | 0 | 1,6 : 0,748 : 0 : 13,447 |
| 5 | E | 70 | 30 | 1,6 : 1,746 : 0,703 : 13,387 |
| 6 | F | 50 | 50 | 1,6 : 1,247 : 1,172 : 13,417 |
| 7 | G | 30 | 70 | 1,6 : 0,748 : 1,641 : 13,447 |
| 8 | H | 0 | 100 | 1,6 : 0 : 2,344 : 13,491 |

3. Sintesis peningkatan rasio Si/Al zeolit *chabazite* (CHA)

Pada tahapan ini, sintesis peningkatan rasio Si/Al dilakukan dengan mereaksikan kembali zeolit CHA yang telah dihasilkan pada tahap ke-2 dan penambahan silika. Sintesis dilakukan dengan metode hidrotermal tanpa menggunakan senyawa organik pada suhu 170 °C.

Untuk meningkatkan rasio Si/Al, maka zeolit CHA hasil inter-transformasi direaksikan kembali dengan menambahkan Cab-O-Sil sebagai sumber silika, natrium aluminat sebagai sumber alumina, KOH dan NaOH sebagai sumber K⁺ dan Na⁺ serta aqua DM dengan perbandingan komposisi molar:



Dimana x dan y berkisar mulai 0.1 hingga 0.4 dan zeolit CHA hasil inter-transformasi yang digunakan adalah 20% dari massa Cab-O-Sil. Campuran ini kemudian diaduk menggunakan magnetic stirer selama 1 jam. Gel yang terbentuk setelah pengadukan dipindahkan kedalam teflon lalu kedalam *autoclave* dan dimasukkan kedalam oven pada suhu 170 °C selama 24 jam. Campuran dua fasa yang dihasilkan dipisahkan menggunakan corong *Buchner* dan pompa vakum. Fasa padat dicuci dan dikeringkan pada suhu 80 °C selama 3-4 jam.

4. Karakterisasi

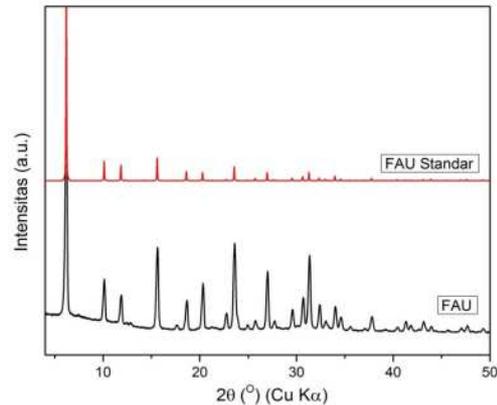
Produk yang diperoleh dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffractions* (XRD) Bruker D8 Advance dengan sumber sinar Cu-K α ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$) untuk mengidentifikasi topologi dari sampel yang disintesis. Morfologi zeolit diobservasi dengan *scanning electron microscope* (SEM) tipe JEOL JEM 1400. Rasio Si/Al dari zeolit CHA yang berhasil disintesis dianalisis menggunakan *X-Ray Fluoroscenes* (XRF, PAN analytical Epsilon 3).

HASIL DAN DISKUSI

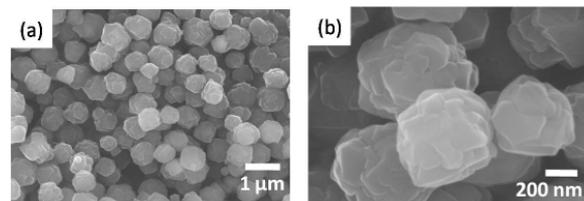
1. Sintesis Zeolit FAU

Pada penelitian ini, zeolit tipe FAU telah disintesis dengan metode hidrotermal menggunakan prekursor LUDOX sebagai sumber silika, natrium aluminat sebagai sumber alumina, NaOH sebagai sumber alkalin, dan air sebagai pelarut. Zeolit FAU disintesis mengikuti prosedur yang telah dilakukan oleh Breck, DW *et. al* pada tahun

1964. Sintesis ini dilakukan tanpa menggunakan senyawa organik sebagai pengarah stuktur. Hasil difaktogram sinar-X (XRD) menunjukkan kesamaan pola difraksi antara zeolit produk dengan standar FAU.



Gambar 1. Pola difraksi zeolit FAU.



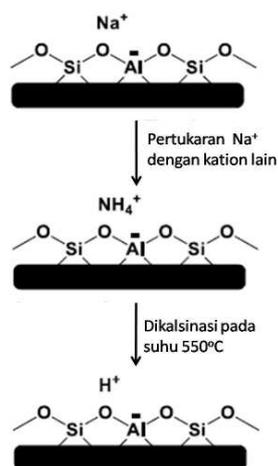
Gambar 2. Morfologi kristal zeolit FAU, (a) perbesaran 10.000 x, (b) perbesaran 65.000 x.

Hasil karakterisasi menggunakan mikroskop pemindai elektron (SEM) memperlihatkan morfologi kristal berbentuk *inter-growth semi-spheroidal* dengan ukuran 500-600 nm.

2. Inter-transformasi zeolit FAU menjadi zeolit CHA
 - a. *Protonasi (Na) zeolit FAU menjadi (H) zeolit FAU*

Protonasi zeolit FAU bertujuan untuk mengaktifkan zeolit dengan mengganti kation Na⁺ yang terdapat dalam kerangka zeolit FAU dengan H⁺. Kation NH₄⁺ dari ammonium nitrat

(NH_4NO_3) 1 M sebanyak 50 mL yang dicampurkan dengan 4 gram zeolit FAU diprediksi mampu mengeluarkan Na^+ hingga rasio Na/Al 0,17 (Robson, 2001) yang terdapat dalam kerangka FAU setelah pengadukan selama 24 jam. Kemudian campuran disaring dan dikeringkan untuk persiapan kalsinasi. Kalsinasi pada suhu 550°C dilakukan untuk membebaskan gas ammonia, sehingga H^+ dapat mengisi kerangka FAU untuk selanjutnya digunakan sebagai zeolit induk pada inter-transformasi FAU menjadi CHA.



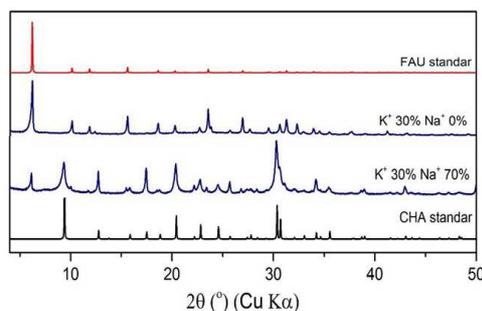
Gambar 3. Reaksi pertukaran ion pada zeolit FAU.

b. Sintesis Zeolit CHA menggunakan zeolit FAU sebagai induk zeolit.

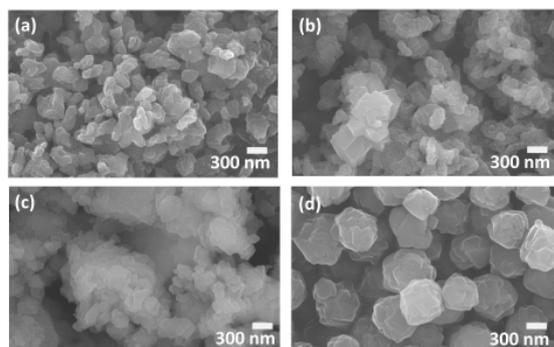
Selain menggunakan metode hidrotermal konvensional, zeolit CHA dapat disintesis dengan metoda inter-transformasi. Adanya kesamaan unit pembangun kerangka (*composite building units, CBU*) material zeolit akan memungkinkan suatu zeolit dengan tipe kerangka tertentu dapat ditransformasi menjadi zeolit dengan kerangka lainnya.

Pada penelitian ini, kami berhasil mentransformasi zeolit FAU menjadi CHA pada beberapa komposisi. Hasil difaktogram sinar-X memperlihatkan adanya pengaruh sinergis komposisi KOH dan NaOH yang digunakan dalam sintesis.

Inter-transformasi zeolit dari FAU menjadi CHA berhasil diperoleh dengan kehadiran K^+ pada persentase 50% hingga 70% baik dengan adanya kompensasi Na^+ ataupun tidak. Hal menarik disini adalah ketika komposisi K^+ diturunkan sebanyak 70% ($\text{K}^+ = 30\%$) tanpa kehadiran Na^+ , pola difraksi sinar X tidak memberikan perubahan, inter-transformasi FAU tidak terjadi dan produk tetap berupa zeolit tipe *faujasite*. Sedangkan, ketika persentase K^+ yang sama ($\text{K}^+ = 30\%$) dikompensasi dengan kehadiran Na^+ sebesar 70%, inter-transformasi terjadi dimana sebagian FAU terkonversi menjadi CHA. Hal ini membuktikan adanya pengaruh sinergis kehadiran kation K^+ dan Na^+ .



Gambar 4. Perbandingan pola difraksi zeolit hasil inter-transformasi dengan perbandingan 30% $\text{K}^+ : 0\% \text{Na}^+$ dan 30% $\text{K}^+ : 70\% \text{Na}^+$.



Gambar 5. Morfologi zeolit CHA hasil inter-transformasi, (a) K⁺ 100%, (b) K⁺ 50%, Na⁺ 50%, (c) K⁺ 50%, (d) FAU.

Mikroskop pemindai elektron (SEM) memperlihatkan zeolit CHA hasil inter-transformasi dengan komposisi berbeda-beda memiliki morfologi dengan ukuran 100-200 nm. Jika dibandingkan dengan morfologi zeolit induk (FAU) (Gambar 4.2), zeolit CHA memiliki ukuran lebih kecil. Sedangkan karakterisasi menggunakan fluorosensi sinar-X (XRF) menunjukkan rasio Si/Al zeolit CHA (K⁺ = 100%) adalah 2 dengan kadar Si sebesar 48,97% dan Al sebesar 22,81%.

3. Peningkatan rasio Si/Al zeolit CHA

Untuk meningkatkan rasio Si/Al, zeolit CHA yang telah berhasil diinter-transformasi direaksikan kembali dengan penambahan Cab-O-Sil sebagai sumber silika dan divariasikan dengan penambahan KOH dan NaOH dalam kisaran 0,1 hingga 0,4 sebagai sumber kation yang nantinya membantu pertumbuhan kerangka. Untuk menyeimbangkan kation yang ada maka kedalam campuran tersebut juga ditambahkan natrium aluminat sebagai sumber alumina yang memberikan kontribusi muatan formal -1. Komposisi molar yang digunakan pada tahap ini adalah:

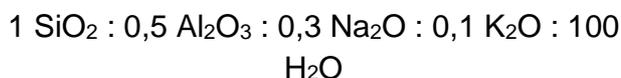
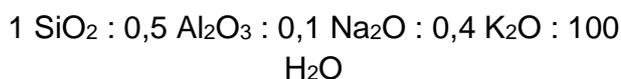
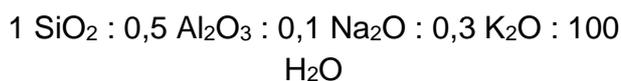


Tabel 2. Variasi komposisi sintesis CHA untuk meningkatkan rasio Si/Al

| No | Perbandingan Komposisi (Molar) | | Produk zeolit |
|----|--------------------------------|----------------------|---------------|
| | Na ₂ O (x) | K ₂ O (y) | |
| 1 | 0,1 | 0,1 | CHA + Amr |
| 2 | 0,1 | 0,2 | CHA + Amr |
| 3 | 0,1 | 0,3 | CHA (65%*) |
| 4 | 0,1 | 0,4 | CHA (56%*) |
| 5 | 0,2 | 0,1 | CHA + Amr |
| 6 | 0,2 | 0,2 | CHA + MER |
| 7 | 0,2 | 0,3 | CHA + MER |
| 8 | 0,2 | 0,4 | CHA + MER |
| 9 | 0,3 | 0,1 | CHA (48%*) |
| 10 | 0,3 | 0,2 | CHA + MER |
| 11 | 0,3 | 0,3 | CHA + MER |
| 12 | 0,3 | 0,4 | CHA + MER |
| 13 | 0,4 | 0,1 | MER |
| 14 | 0,4 | 0,2 | MER |
| 15 | 0,4 | 0,3 | MER +CHA |
| 16 | 0,4 | 0,4 | MER |

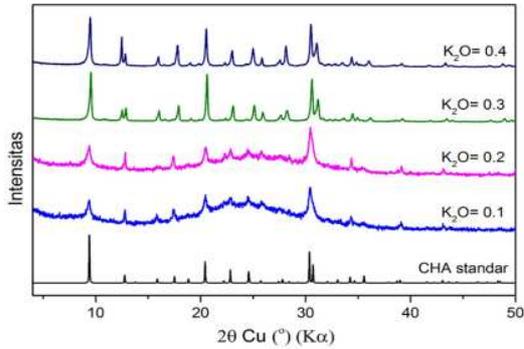
*persen yield dari produk CHA yang dihasilkan

Difaktogram sinar-X memperlihatkan produk zeolit dengan kerangka CHA pada perbandingan komposisi:

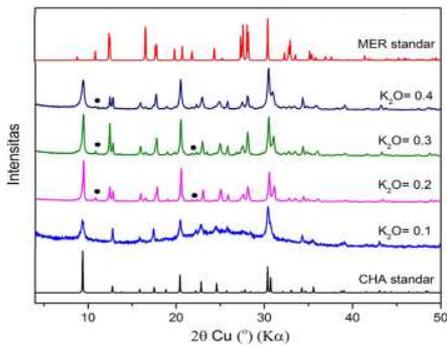


Selain itu, pada perbandingan komposisi Na₂O = 0,1 dengan K₂O = 0,1 dan 0,2 (**Gambar 6**), dan pada Na₂O = 0,2 dengan K₂O = 0,1 (**Gambar 7**) pola difraksi sinar X menunjukkan adanya fasa amorf dimana belum terjadi kristalisasi, sedangkan munculnya puncak pada 2θ yang sama dengan CHA standar diperkirakan berasal

dari CHA hasil inter-transformasi yang dicampurkan sebelum pemanasan secara hidrotermal dilakukan.

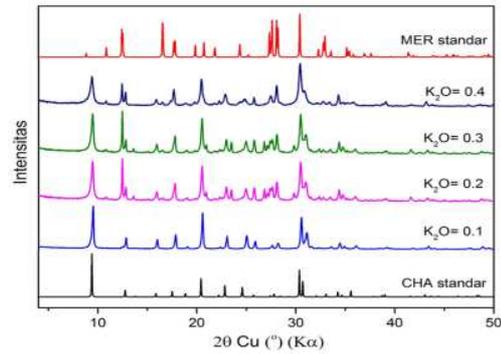


Gambar 6. Pola difraksi sinar X dengan komposisi 1 SiO₂ : 0,05 Al₂O₃ : 0,1 Na₂O : 0,1-0,4 K₂O : 100 H₂O.

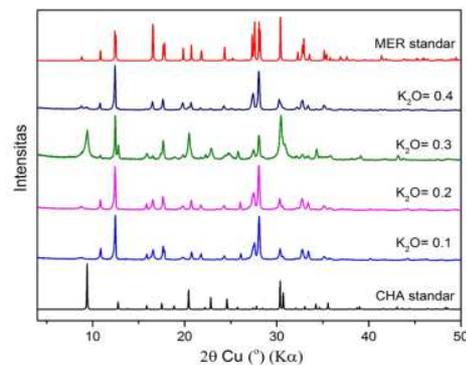


Gambar 7. Pola difraksi sinar X dengan komposisi 1 SiO₂ : 0,05 Al₂O₃ : 0,2 Na₂O : 0,1-0,4 K₂O : 100 H₂O.

Difraksi sinar X (Gambar 7) menunjukkan munculnya puncak pada 2θ; 10,8 dan 21,8 pada Na₂O = 0,2 dan K₂O = 0,3-0,4 yang menunjukkan kehadiran zeolite tipe *merlinoite* (MER). Kemunculan kerangka MER akan dijelaskan pada bagian akhir pembahasan.



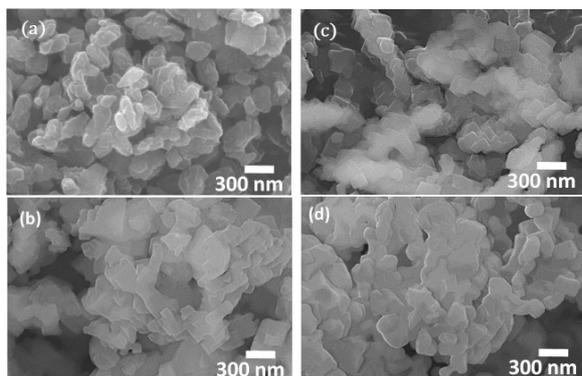
Gambar 8. Pola difraksi sinar X dengan komposisi 1 SiO₂ : 0,05 Al₂O₃ : 0,3 Na₂O : 0,1-0,4 K₂O : 100 H₂O.



Gambar 9. Pola difraksi sinar X dengan komposisi 1 SiO₂ : 0,05 Al₂O₃ : 0,4 Na₂O : 0,1-0,4 K₂O : 100 H₂O.

Zeolit CHA berhasil disintesis pada komposisi Na₂O = 0,3 dan K₂O = 0,1 sedangkan pada Na₂O = 0,3 dan K₂O = 0,2-0,4 (**Gambar 8**) dan Na₂O = 0,4 dan K₂O = 0,1-0,3 (**Gambar 9**) produk yang dihasilkan berupa campuran CHA dan MER.

Selanjutnya zeolite MER tanpa adanya pengotor jenis kerangka lain dihasilkan pada komposisi Na₂O = 0,4 dan K₂O = 0,4.



Gambar 10. Morfologi zeolit CHA, (a) hasil inter-transformasi, (b) 0,1 Na₂O : 0,3 K₂O, (c) 0,1 Na₂O : 0,4 K₂O, (d) 0,3 Na₂O : 0,1 K₂O.

Hasil karakterisasi menggunakan mikroskop pemindai elektron memperlihatkan zeolit CHA yang telah disintesis seperti gambar diatas.

Fluorosensi sinar-X menunjukkan rasio Si/Al meningkat setelah zeolit CHA hasil inter-transformasi dengan Si/Al = 2,0 direaksikan kembali dengan penambahan sumber silika serta variasi KOH dan NaOH menjadi Si/Al = 4,0.

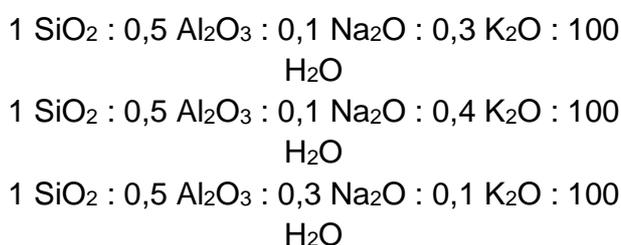
Tabel 3. Perbandingan rasio Si/Al zeolit CHA

| Sampel | Si/Al |
|--|-------|
| CHA hasil inter-transformasi | 2,0 |
| CHA (0,1 Na ₂ O : 0,3 K ₂ O) | 4,0 |
| CHA (0,1 Na ₂ O : 0,4 K ₂ O) | 3,2 |
| CHA (0,3 Na ₂ O : 0,1 K ₂ O) | 4,0 |

KESIMPULAN DAN SARAN

Pada penelitian ini, zeolit CHA berhasil disintesis dengan mengkombinasikan metode inter-transformasi zeolit dan metode hidrotermal konvensional. Sintesis zeolit CHA

menggunakan metoda inter-transformasi menunjukkan adanya pengaruh sinergis ion K⁺ dan Na⁺ terhadap kristalisasi CHA. Zeolit CHA yang berhasil disintesis pada tahap ini memiliki rasio Si/Al = 2,0. Sedangkan tahap selanjutnya zeolit CHA hasil inter-transformasi berhasil dimodifikasi untuk menghasilkan CHA yang baru dengan peningkatan rasio Si/Al menjadi 4,0. Produk zeolit CHA diperoleh dengan perbandingan komposisi:



Sebagai saran, perlu dipahami bahwa terbentuknya zeolit CHA rasio Si/Al tinggi dengan mengetahui interaksi lokal aluminium pada kerangka CHA dengan spektroskopi NMR (*Nuclear Magnetic Resonance*).

DAFTAR PUSTAKA

- Auerbach, S.M., Carrado, K.A., Dutta, P.K., (2003)., *Handbook of Zeolit Science and Technology*, 1st edition, Marcel Dekker, Inc., New York, 1-22.
- Baur, W.H., (1964)., On the cation and water positions in faujasite., *Am. Miner.* **49**, 697-704.
- Bieniok, A., Bornholdt, K., Brendel, U., Baur, W.H., (1996)., Synthesis and crystal structure of zeolite W, resembling the mineral merlinoite., *J. Muter. Chem.*, **6**, 271-275.
- Bohström, Z., Arstad, B., and Lillerud, K.P.,(2014)., Preparation of high

- silica chabazite with controllable particle size, *Microporous and Mesoporous Materials*, **195**, 294–302.
- Cejka, J., Bekkum H., Corma, A., dan Schuth, F. (2007) : Introduction of Science and Practice- 3rd Revised Edition, 39-103.
- Cundy, C.S., and Cox, P.A., (2005)., The hydrothermal synthesis of zeolites: Precursors, intermediates and reaction mechanism., *Microporous and Mesoporous Materials*, **82**, 1–78.
- Duan, A., Li, T., Niu, H., Yang, H., Wang, Z., Zhao, Z., Jiang, G., Liu, J., Wei, Y., Pan, H., (2015), A New Era of Catalysis for a Sustainable World Synthesis of a novel zeolite W and application in the catalyst for FCC gasoline hydro-upgrading., *Catalysis Today*, **245**, 163-171.
- Eilertsen, E.A., Arstad, B., Svelle, S., and Lillerud, K.P., (2012)., Single parameter synthesis of high silica CHA zeolites from fluoride media, *Microporous and Mesoporous Materials*, **153**, 94–99.
- Erichsen, M.W., Svelle, S., Olsbye, U., (2013)., H-SAPO-5 as methanol-to-olefins (MTO) model catalyst: Towards elucidating the effects of acid strength, *Journal of Catalysis*, **298**, 94–101.
- Fabiani, V.A., *Sintesis dan Karakterisasi Zeolit MFI pada Suhu Rendah menggunakan Prekursor Silika Alam*, (2014)., Institut Teknologi Bandung.
- Ferchiche, S., Warzywoda, J., Sacco, (2001)., Direct synthesis of zeolite Y with large particle size., *International Journal of Inorganic Materials*, **3**, 773 –780.
- Garcia, G., Cardenas, E., Cabrera, S., Hedlund, J., and Mouzon, J., (2015)., Synthesis of zeolite Y from diatomite as silica source, *Microporous and Mesoporous Materials*, **219**, 29-37.
- Goel, S., Zones, S.I., and Iglesia, E., (2015)., Synthesis of Zeolites via Interzeolit Transformations without Organic Structure-Directing Agents, *Chem. Mater*, **27**, 2056–2066.
- Goel, S., Zones, S.I., and Iglesia, E., (2014)., Encapsulation of Metal Clusters within MFI via Interzeolite Transformations and Direct Hydrothermal Syntheses and Catalytic Consequence of Their Confinement., *J. Am. Chem. Soc*, **136**, 15280-15290.
- Hasegawa, Y., Abe, C., Mizukami, F., Kowata, Y., and Hanaoka, T., (2010)., *Application of a CHA-type zeolite membrane to the esterification of adipic acid with isopropyl alcohol using sulfuric acid catalyst.*, *Journal of Membrane Science*, **415–416**, 368–374.
- Hasegawa, Y., Abe, C., Nishioka, M., Sato, K., Nagase, T., and Hanaoka, T., (2010), Influence of synthesis gel composition on morphology, composition, and dehydration performance of CHA-

- type zeolite membranes, *Journal of Membrane Science*, **363**, 256–264.
- Honda, K., Yashiki, A., Itakura, M., Ide, Y., Sadakane, M., and Sano, T., (2010)., Influence of Seeding on FAU-BEA* Interzeolite Conversions, *Microporous and Mesoporous Materials*, **142**, 151-167.
- Imai, H., Hayashida, N., Yokoi, T., and Tatsumi, T., (2014)., Direct crystallization of CHA-type zeolite from amorphous aluminosilicate gel by seed-assisted method in the absence of organic-structure-directing agents., *Microporous and Mesoporous Materials*, **196**, 341-348.
- Ismunandar., *Padatan Oksida Logam; Struktur, Sintesis, dan Sifat-sifatnya.*, (2006)., Penerbit ITB, Bandung, 14 – 16.
- Itabashi , K., Kamimura, Y., Iyoki, K., Shimojima, A., and Okubo, T., (2012)., A working hypothesis for Broadening Framework Typrs of Zeolites in Seed-assisted Synthesis without Organin Structure Directing Agents. *J. Am. Chem. Soc*, **134**, 11542-11549.
- Itakura, M., Goto, I., Takahashi, A., Fujitani, T., Ide, Y., Sadakane, M., and Sano, T., (2011)., Sintesis of high-silica CHA type zeolite by interzeolite conversion of FAU type zeolite in presence of seed crystals., *Microporous and Mesoporous Materials*, **144**, 91-96.