

JURNAL ZEOLIT INDONESIA
Journal of Indonesian Zeolites

Vol. 9 No. 2, November, Tahun 2010

ISSN 1411-6723

1. Pengaruh Konsentrasi Cu dalam Cu-Zeolit Terhadap Daya Antibakteri pada Streptococcus Mutans (**Dyah Irnawati, Purwanto Agustiono, Endi Hanifah Wardhani**) 47
2. Ekstraksi Alumina dari Residu Bauksit untuk Bahan Baku Zeolit Sintetis dengan Produk Samping Konsentrat Besi (**Muchtar Aziz**) 54
3. Rekayasa Mineral Zeolit dengan Teknik Wet Impregnation Logam Inhibitor sebagai Bahan Dasar Anti-Septik dengan Metode Aliran Kontinyu (**Lenny Marilyn Estiaty**) 61
4. Kinetika dan Difusi Penukaran Ion Cs kedalam Zeolit Bayah, Lampung dan Tasikmalaya (**Dian Anggraini, Noviaty, Arif Nugroho**) 71
5. Analisis Isotop Cs dalam Proses Pemisahan Cs dengan Zeolit Menggunakan Spektrometri- γ (**Arif Nugroho, Dian Anggraini, Noviaty**) 75
6. Hidroksilasi Fenol dengan Menggunakan Katalis Moo₃/Ts-1 yang dikalsinasi pada Suhu Bervariasi (**Anis Farika, Syafsir Akhlus, Didik Prasetyoko**) 79

Diterbitkan Oleh:

IKATAN ZEOLIT INDONESIA (IZI)

Indonesian Zeolite Assosiation (IZA)

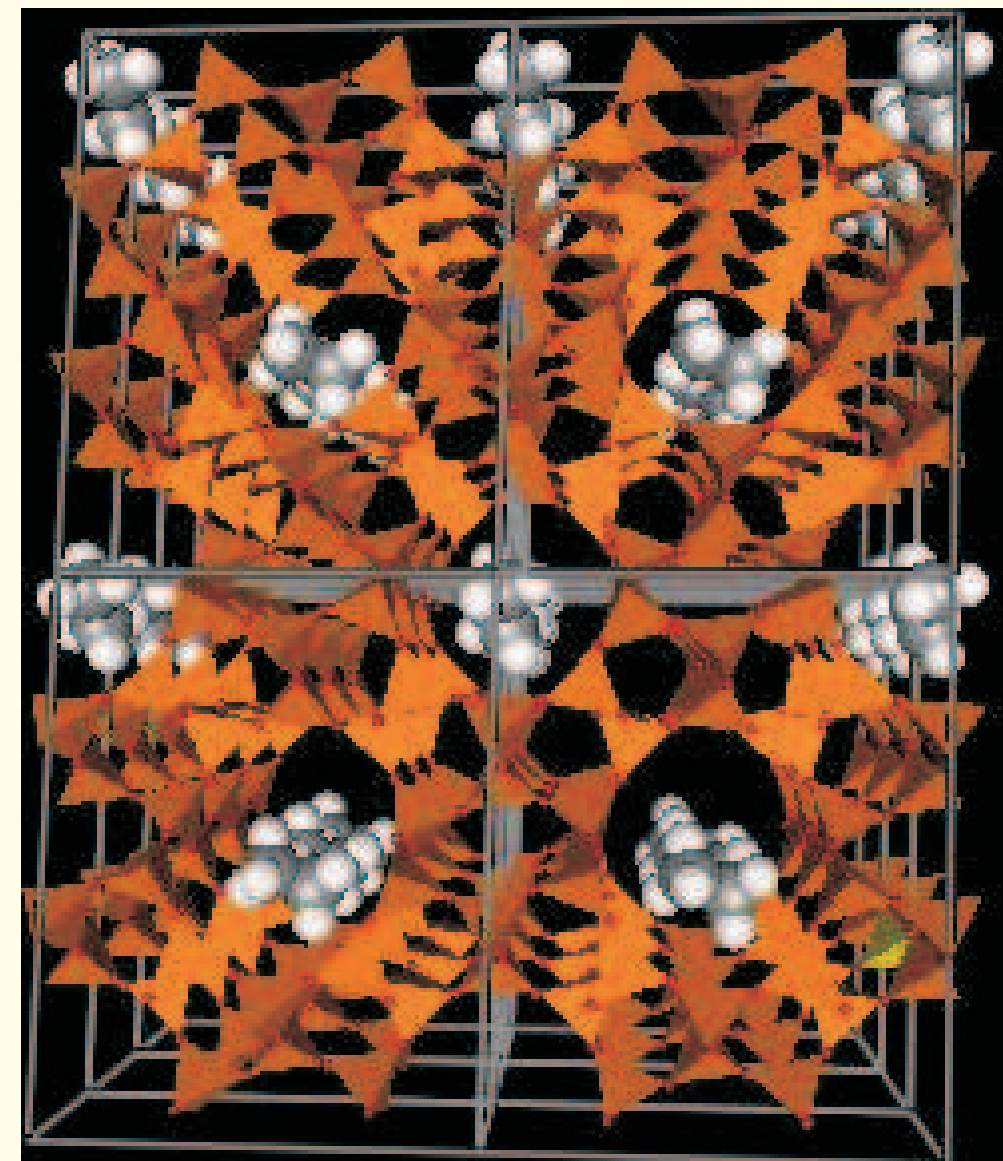
Alamat Redaksi:

Departemen Ilmu Tanah dan Sumberdaya Lahan, Fakultas Pertanian, IPB
Jl. Meranti, Kampus IPB Darmaga, Bogor, Indonesia
Telepon. (0251) 629357, Faksimili: (0251) 629357,
HP: 08129674021 email:
emails: sekretariat_izi@yahoo.com; suwardi_bogor@yahoo.com

JURNAL ZEOLIT INDONESIA
Journal of Indonesian Zeolites

Vol. 9 No. 2, November, Tahun 2010

ISSN 1411-6723

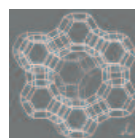


IKATAN ZEOLIT INDONESIA (IZI)
Indonesian Zeolite Assosiation (IZA)



JURNAL ZEOLIT INDONESIA

Journal of Indonesian Zeolites



Vol. 9 No. 2, November, Tahun 2010

EDITOR INTERNASIONAL :

Prof. Dr. Alan Dyer DSc. FRCC.
(University of Salford, UK)
Prof. Dr. G.Q. Max Lu

(University of Queensland, Australia)

DEWAN EDITOR :

Dr. Yateman Arryanto
Dr. Siti Amini
Dr. Suwardi
Dr. Supandi Suminta
Ir. Husaini MSc

PELAKSANA EDITOR:

Hesti Nurmayanti
Maesaroh

PIMPINAN REDAKSI/CHIEF EDITOR:

Dr. Suwardi

ALAMAT REDAKSI/ SECRETARIATE ADDRESS :

Suwardi
Departemen Ilmu Tanah dan
Sumberdaya Lahan, Fakultas
Pertanian, IPB
Jl. Meranti, Kampus IPB
Darmaga, Bogor, Indonesia
Telepon. (0251) 629357,
Faksimili: (0251) 629357,
HP: 08129674021 emails:
suwardi_bogor@yahoo.com
sekretariat_izi@yahoo.com

REKENING BANK/ BANK ACCOUNT:

BCA Cabang Bogor 0950698381

J. Zeolit Indonesia diterbitkan oleh IZI (Ikatan Zeolit Indonesia) setahun dua kali setahun pada bulan Maret dan November, dalam versi bahasa Indonesia yang dilengkapi dengan abstrak berbahasa Indonesia dan Inggris (*abstract*) atau semua ditulis dalam versi English.

Naskah yang diterbitkan dalam Jurnal Zeolit Indonesia (JZI) ini mengandung tulisan ilmiah baik berupa tinjauan, gagasan, analisis, ilmu terapan, teknologi proses dan produksi zeolit, zeotipe atau bahan lain yang terkait dengan bahan nanopori.

Pengantar Redaksi

Jurnal yang diterbitkan oleh asosiasi profesi seperti Jurnal Zeolit Indonesia ini memperoleh perhatian khusus dari Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi. Dalam penerbitannya kali ini merupakan hasil dari Seminar Nasional Zeolit Indonesia yang ke-6 dan mencakup makalah zeolit dalam hubungannya dengan bidang pertanian dan industri. Kami mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi yang telah memberikan bantuan dana kepada Jurnal Zeolit Indonesia untuk pengembangan jurnal ini. Kami terus berusaha untuk meningkatkan kualitas jurnal dan mendistribusikannya kepada pembaca yang lebih luas. Terima kasih.

*Salam,
Redaksi*

Editorial

Journals published by professional association such as Indonesian Zeolite Journals obtain a special attention from Directorate General of Higher Education. In this publication is result of The National Seminar Zeolite Indonesia-6th and including zeolite papers and it is relation on Agriculture and Industry. We thank Directorate General of Higher Education for the relief fund for improvement of this journal. We endeavor for improvement of the quality and wider distribution of this journal. Thank you.

*Best regards,
Editors*

Catatan Untuk Penulis:

Kontribusi naskah dapat disampaikan kepada Pimpinan Redaksi JZI, disertai lampiran surat pernyataan penulis dan pembantu penulis (jika ada) tentang keabsahan dan persetujuan bahwa isi tulisan tersebut benar-benar merupakan hasil temuan sendiri dan belum pernah dipublikasikan. Naskah yang tidak memenuhi persyaratan yang telah ditentukan Staf Editor, tidak akan dikembalikan. Komunikasi antar Penulis dengan Editor dapat diadakan secara langsung demikian pula komunikasi antara pembaca dengan penulis. Isi dan kebenaran dari makalah di luar tanggung jawab redaksi.

Tata Cara Penulisan Naskah

Naskah yang akan dimuat dalam Jurnal Zeolit Indonesia harus bersifat asli, belum pernah dipublikasikan atau diterbitkan dalam media cetak lain. Naskah ditulis secara ilmiah dan sistematika sesuai dengan panduan berikut:

Judul, Abstrak dengan kata kunci (bahasa Indonesia dan Bahasa Inggris), **Isi teks** terdiri dari sub judul **Pendahuluan, Bahan dan Metoda eksperimen, Hasil dan bahasan, Kesimpulan, Ucapan Terimakasih** (kalau ada), dan **Daftar Acuan Pustaka**, dan atau Daftar Pustaka (Bibliografi) yang terkait, ditulis dengan huruf kapital Arial 10 tebal.

Format:

Naskah diketik menggunakan *Microsoft Word* atau *pdf.format* dan dicetak pada kertas HVS ukuran A4, dengan batasan sebagai berikut: Margin atas dan margin kiri masing-masing 3,2 cm, margin kanan dan bawah masing-masing 2,6 cm. Jumlah halaman **maksimum 25** halaman termasuk gambar dan tabel.

- Judul** ditulis singkat dan informatif (huruf kapital, tebal, huruf Arial ukuran 12, di posisi tengah).
- Nama penulis** (huruf normal, Arial ukuran 10, di posisi tengah), dengan catatan kaki **Alamat Penulis** yang ditulis di baris terakhir halaman tersebut. **Unit kerja penulis** ditulis di bawah penulis dengan jarak 1 spasi.
- Abstrak** (sebagai judul: ditulis dengan huruf Arial kapital 10, tebal, di tengah. Isi abstrak ditulis dengan huruf Arial 9). **Isi abstrak** ditulis dalam bahasa Indonesia dan bahasa Inggris. Semua tulisan berbahasa Inggris menggunakan huruf *miring* termasuk judul makalah dalam bahasa Inggris ditulis dengan huruf miring kapital, Arial 9 tebal. Abstrak terdiri dari satu paragraf tunggal dengan jarak baris 2 spasi.
- Kata kunci** dan **key words** ditulis di bawah abstrak masing-masing, dengan huruf dan ukuran sama seperti isi abstrak.
- Isi teks** ditulis dengan huruf Arial 10 dengan spasi 2 dan dibagi 2 kolom dengan jarak antar kolom 1 cm. Antar sub-judul dengan baris pertama alinea atau antar alinea diberi jarak spasi-2 menggunakan format **justify**.
- Gambar dan Tabel** ditulis menggunakan perangkat lunak yang kompatibel dengan *Microsoft Word*, dicetak dengan huruf **jelas** berkualitas tinggi, dan pada lembar terpisah.
- Daftar Acuan **Pustaka** ditulis berdasarkan nomor urut di dalam isi teks dengan angka dalam kurung [] dan sesuai dengan nomor daftar acuannya. Cara penulisan pustaka meliputi: Nama semua penulis, Tahun, Judul tulisan, Nama buku atau majalah, Volume, Nomor, dan Nomor halaman.
- Makalah yang diterima harus dilengkapi dengan disket file dokumennya, dan diserahkan kepada pimpinan redaksi.

Instructions for Authors

Journal of Indonesian Zeolites is the journal providing communication among users, potential users and person otherwise interested in topics such as zeolites and zeotypes microporous and nanoporous materials including reviews, articles, reports characterizations, analyses, modification and synthesizing process technology, its products and their usage, development of materials applications.

Manuscript should contain the original reviews, experimental results or ideas written in English or Indonesian systematically, and it has not been published in any other publications. It contains of **Title, Abstract** with appropriate key words and **Full Text** which cover sub-titles of **Introduction, Experimental methods, Result and Discussion, Conclusion, Acknowledgment** (if it's necessary), **References**, and related **Bibliography**, which are respectively written using bold capital Arial 10 font.

Format:

The manuscript should be written on A4 paper size using the Microsoft Word or pdf format, with the top and left margin of 3.2 cm, and the right and bottom margin of 2.6 cm. The maximum total pages are not exceeded from 25 pages include figures and tables.

- Title**, use a brief and informative (Capital Arial-12 **bold** font, and center).
- Authorship**, provide full names of authors and the name of institutions where the work is completed. Use the footnote for the addresses of all authors on the last line of the first full page.
- Abstract** as a title is written in Arial 10 capital bold and centre. The contents of abstract is written in normal font Arial 9, containing of a paragraph using a double spaced line.
- Key words** written using the same fonts as in Abstract.
- Full Text** is written using Arial 10 font and double spacing line with **justify** align with two column format, with column space of 1 cm. Between sub-title and the first line of the paragraph or between paragraphs should use a double spacing line.
- Figures and Tables** should be done using the Microsoft Word compatible software, and printed with clearly high quality printing on separated sheets.
- Reference** to other work should be numbered consequently and indicated by superscript number in the text corresponding to that in the reference list. It covers The name of all authors, Title, Name of Book or Journal/ Publication, Volume and Number Year (in the bracket) and numbers of pages of publication.
- The accepted manuscript should be completed with document file and submitted to the Chief Editor.

PENGARUH KONSENTRASI CU DALAM CU-ZEOLIT TERHADAP DAYA ANTIBAKTERI PADA *STREPTOCOCCUS MUTANS*

Dyah Irnawati, Purwanto Agustiono, Endi Hanifah Wardhani

Bagian Biomaterial, Fakultas Kedokteran Gigi, Universitas Gadjah Mada
Email: ninnad38@yahoo.com

ABSTRAK

Mikroorganisme yang terdapat di dalam rongga mulut dapat menyebabkan penyakit pada jaringan keras dan lunak rongga mulut. Salah satu mikroorganisme tersebut adalah bakteri *S. mutans* yang menjadi etiologi karies gigi. Tembaga (Cu) merupakan salah satu agen kimiawi untuk mengendalikan pertumbuhan mikroorganisme. Tembaga dapat digabungkan dengan zeolit sebagai material antibakteri. Penelitian ini bertujuan mengetahui pengaruh konsentrasi Cu di dalam Cu-zeolit alam terhadap daya antibakteri pada *S. mutans*. Penelitian dilakukan dengan membuat 5 kelompok konsentrasi Cu-zeolit, yaitu kelompok 0,05M, 0,1M, 0,15M, 0,2M, dan 0,25M. Serbuk zeolit 100 mesh diaktivasi pada suhu 200 °C selama 1 jam. Larutan CuCl₂ dengan konsentrasi 0,05M hingga 0,25M dibuat masing-masing dengan volume 80 mL. Cu-zeolit dibuat dengan mereaksikan serbuk zeolit 2 gr dengan larutan CuCl₂ 80 mL selama 1 jam pada suhu 100 °C, kemudian disaring, dicuci, dan dikeringkan dalam oven dengan suhu 100 °C selama 24 jam. Bakteri *S. mutans* (0,1 mL x 10⁸ CFU/mL) ditanam dalam media padat MHA, kemudian Cu-zeolit (30 mg) dimasukkan dalam sumuran pada media agar dan diinkubasi selama 24 jam pada suhu 37 °C (n=5). Diameter zona translusen diukur dengan jangka sorong digital (0,01 mm). Data yang diperoleh dianalisis dengan anava 1 jalur dan HSD dengan taraf signifikansi 0,05. Hasil penelitian menunjukkan rata-rata zona translusen adalah 0 mm (kelompok 0,05M), 16,03 ± 0,47 mm (0,10M), 16,45 ± 0,91 mm (0,15M), 18,08 ± 0,39 mm (0,20M), dan 18,26 ± 0,68 mm (0,25M). Uji anava menunjukkan konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit alam 0,10M hingga 0,25M berpengaruh secara bermakna terhadap zona translusen *S. mutans* (p < 0,01). Hasil uji HSD menunjukkan perbedaan bermakna antar semua kelompok, kecuali antara kelompok 0,01M dan 0,15M serta 0,20M dan 0,25M (p > 0,05). Kesimpulan penelitian ini adalah konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit alam berpengaruh terhadap daya antibakteri pada *S. mutans*. Konsentrasi Cu 0,01M dalam Cu-zeolit alam telah memiliki daya antibakteri terhadap *S. mutans* dan daya antibakteri tertinggi pada kelompok konsentrasi 0,20M.

Kata kunci : konsentrasi Cu, Cu- zeolit alam, daya antibakteri, *S. mutans*.

ABSTRACT

THE INFLUENCE OF Cu CONCENTRATION ON Cu-ZEOLITE TO ANTIBACTERIAL POWER IN *STREPTOCOCCUS MUTANS*. Microorganisms on the mouth can cause disease on hard and soft muscular of the mouth. One of the microorganisms is a bacteria *S. mutans* which become etiology of dental caries. The copper (Cu) is one of chemical agents to control microorganism growth. The copper could be combined with zeolite as antibacterial materials. This study aimed to know the affect Cu concentration on Cu-Natural zeolite to antibacterial power of *S. mutans*. The study was conducted by making five groups of Cu-Zeolite are 0,05M, 0,1M, 0,15M, 0,2M, and 0,25M. 100 mesh zeolite powder was activated at temperature 200 °C during one hours. CuCl₂ solution with concentration of 0,05 M until 0,25 M are made each with volume of 80 mL. Cu-zeolite made by reacting 2 gram of zeolite powder with 80 ml of CuCl₂ solution for one hours at temperature of 100 °C, then filtered, washed, and dried on the oven at 100 °C during 24 hours. *S. mutans* bacterial (0,1 mL x 10⁸ CFU/mL) were grown in solid media MHA, then Cu-Zeolite (30 mg) was included on pitting at gel media an incubated for 24 hours at temperature 37 °C (n=5). Transulent zone diameter was measured with digital slide-term (0.01 mm). The data were analyzed by anava one stripe and HSH with level signification of 0,05. The result showed an average of translucent zones was 0 mm (0,05 M gropus), 16,03 ± 0,47 mm (0,10M), 16,45 ± 0,91 mm (0,15M), 18,08 ± 0,39 mm (0,20M), and 18,26 ± 0,68 mm (0,25M). Anava test showed Cu concentration on 0,10 M up to 0,25 M of Cu-Natural zeolite was significantly effect on translucent zones of *S. mutans* (p < 0,01). The result of HSD showed a significantly difference among all gropus, except on 0,01 M and 0,15 M, and 0,20 m and 0,25 m (p > 0,05). Conclusion of this study is Cu concentration in Cu-natural zeolite has affected antibacterial power of *S. mutans*. 0,01 M of Cu-concentration in Cu-natural zeolite has an antibacterial power to *S. mutans* and highest antibacterial power was on concentration groups of 0,20M.

Keywords: Cu-concentration, Cu-natural zeolite, antibacterial power, and *S. mutans*

PENDAHULUAN

Di dalam rongga mulut terdapat mikroorganisme atau mikroflora normal yang mempunyai hubungan yang harmonis dengan *host* nya, yaitu gigi, permukaan mukosa, saliva, dan cairan krevikular gingiva. Perubahan hubungan tersebut dapat menyebabkan terjadinya penyakit di dalam rongga mulut. Manifestasi klinis dari ketidakseimbangan hubungan antara mikroflora dan rongga mulut yang paling umum adalah terjadinya karies gigi dan penyakit periodontal (Marsh & Martin, 2000) [1]. Salah satu mikroorganisme rongga mulut yang berhubungan dengan etiologi karies gigi adalah *Streptococcus mutans* (Nolte, 1982) [2].

Mikroorganisme terdapat pada permukaan gigi di dalam plak gigi (Nolte, 1982). Salah satu upaya pencegahan karies gigi dapat dilakukan dengan penggunaan agen antimikrobal untuk mengontrol plak gigi (Marsh & Martin, 2000). Telah dikembangkan pula berbagai material restorasi gigi yang memiliki sifat antibakteri untuk pencegahan karies gigi, misalnya *copper cements*, *silver cements*, *zinc oxide eugenol*, dan *glass ionomer cements* (Combe, 1992; Powers & Sakaguchi, 2006) [3] [4]. Tembaga merupakan salah satu logam berat yang digunakan sebagai agen kimiawi antimikroba. Aktifitas antimikroorganisme suatu bahan dapat dipengaruhi oleh konsentrasi efektif bahan tersebut (Nolte, 1982).

Telah dikembangkan senyawa antibakteri yang terbuat dari paduan logam berat dengan material berpori dan memiliki luas permukaan yang tinggi seperti lempung, zeolit, silica, alumina, dan karbon. Senyawa ini efektif melawan semua jenis mikroorganisme, stabil, dan dapat bekerja pada berbagai pH dan suhu (Jenkins & Gilles, 2001) [5]. Zeolit banyak terdapat di Indonesia, antara lain terdapat di daerah Gunung Kidul dan Kulonprogo Yogyakarta (Harjanto, 1987) [6]. Penelitian ini bertujuan mengetahui pengaruh konsentrasi ion Cu dalam Cu-zeolit alam terhadap pertumbuhan *Streptococcus mutans*. Diharapkan hasil penelitian Cu-zeolit alam ini dapat bermanfaat dalam menentukan konsentrasi optimal Cu dalam Cu-zeolit dan dapat diaplikasikan dalam pembuatan material antibakteri di bidang kedokteran gigi.

TINJAUAN PUSTAKA

Salah satu mikroorganisme di dalam rongga mulut adalah *Streptococcus mutans*. Bakteri ini mempunyai sel berbentuk bulat atau lonjong dengan diameter sekitar 1 μ m dan tersusun dalam bentuk rantai atau berpasangan. *Streptococcus mutans* merupakan bakteri gram positif, alfa hemolitik, dan bersifat fakultatif dalam kebutuhan oksigennya. Morfologi *S. mutans* pada media agar mitis salivarius berupa koloni berdiameter 0,1 – 1 mm, keras, seperti *rasberry* dan menonjol setelah diinkubasi selama 24 jam dengan suhu 37°C dalam lingkungan anaerob (Nolte, 1982). *Streptococcus mutans* merupakan bakteri pada plak gigi yang mampu mengubah karbohidrat menjadi asam yang menyebabkan karies gigi (Marsh & Martin, 2000).

Penggunaan agen kimiawi untuk mencegah infeksi telah lama digunakan. Pemaparan mikroorganisme pada agen kimiawi germisid dengan konsentrasi rendah, sedang, dan tinggi akan menghasilkan efek bervariasi. Agen kimiawi harus memiliki sifat : (1) menunjukkan kemampuan membunuh mikroorganisme dalam konsentrasi rendah dalam beberapa menit dan menunjukkan spektrum mikrobial yang luas, (2) larut dan stabil dalam air atau pelarut tanpa kehilangan kemampuan membunuhnya, (3) relatif tidak toksik pada jaringan, (4) menunjukkan kekuatan penetrasi permukaan dan tidak menyatu dengan bahan organik, (5) non korosif dan non *staining*, serta (6) memiliki sifat deterjen dan deodoran (Nolte, 1982).

Logam berat dan senyawanya merupakan salah satu agen kimiawi untuk mengendalikan pertumbuhan mikroorganisme. Beberapa logam berat yang sering digunakan adalah perak (Ag), merkuri (Hg), tembaga (Cu), dan seng (Zn) (Nolte, 1982). Logam Hg dan Pb tidak dapat digunakan sebagai bahan antibakterial karena dalam kadar yang rendah bersifat toksik terhadap manusia (Lin dkk., 2003) [7]. Perak memiliki kelemahan sebagai antibakterial, karena bersifat tidak stabil. Ion Cu mempunyai sifat anti jamur yang tinggi, stabilitas kimia yang baik, dan harga relatif murah (Li dkk., 2002) [8].

Kemampuan logam berat dalam jumlah sedikit, terutama perak dan tembaga, untuk menunjukkan aktivitas antimikroba karena adanya efek oligodinamik Logam berat menunjukkan efek antimikrobal dengan mengkoagulasi protein dan bereaksi dengan

gugus SH (sebagai enzim) dan menginaktivasinya (Nolte, 1982). Pada awal abad 21 dikembangkan senyawa antibakteri yang terbuat dari paduan logam berat dengan material berpori dan memiliki luas permukaan yang tinggi seperti zeolit (Jenkins & Gilles, 2001).

Mineral zeolit terdiri dari zeolit alam dan sintetis. Mineral zeolit sintetis tidak dapat sama persis dengan mineral zeolit alam, walaupun memiliki sifat fisik yang jauh lebih baik. Mineral zeolit alam memiliki beberapa sifat yang menguntungkan dibanding zeolit sintetis (Harjanto, 1987). Mineral zeolit alam bukan merupakan mineral tunggal melainkan sekelompok mineral yang terdiri dari beberapa jenis (spesies) seperti modernit, klinoptilolit, erionit, dan kabsit. Secara mineralogis, zeolit alam merupakan senyawa alumino silikat terdehidrasi dengan unsur utama yang terdiri dari kation alkali dan alkali tanah. Senyawa ini berstruktur tiga dimensi dan mempunyai pori yang dapat diisi oleh molekul air (Suhala & Arifin, 1997) [9]. Ukuran porizeolit adalah 2-8 Å⁰. (Sutarti & Rahmawati, 1994) [10]. Zeolit berstruktur porus yang dapat mengakomodasi kation dengan variasi yang luas, seperti Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺ dan kation lainnya. Ion positif ini tidak terikat kuat dan siap dipertukarkan dengan ion lainnya dalam larutan kontak (Suhala & Arifin, 1997).

Zeolit alam di Indonesia mengandung silika-alumina amorf dan kristal mordenit (Tri Sunaryanti, 1996) [11]. Mineral yang sering ditemukan pada zeolit alam di Indonesia adalah klinoptilolit dan mordenit (Eddy, 2004) [12]. Zeolit alam asal Gunungkidul Yogyakarta mengandung jenis mordenit dan klinoptilolit. Zeolit alam tersebut memiliki kapasitas pertukaran ion antara 39,41% sampai 67,84% (kategori moderat), pH 7,3 – 8,3, dan penyerapan air 13,42 – 27,60 % (Idrus dkk, 2008) [13].

Zeolit memiliki sifat dehidrasi, adsorpsi, penukar ion, katalis, dan penyaring atau pemisah. Perlu dilakukan aktivasi dan modifikasi untuk memperoleh zeolit dengan kemampuan daya serap, daya tukar ion, maupun daya katalis yang lebih tinggi. Proses aktivasi zeolit dapat dilakukan secara fisis dengan pemanasan dan secara kimiawi dengan larutan asam atau basa. Proses modifikasi dapat dilakukan dengan cara melapisi zeolit dengan polimer organik (Sutarti & Rahmawati, 1994). Kemampuan zeolit sebagai penukar ion digunakan untuk membuat agen antibakteri, yaitu dengan

menukar kation alkali atau alkali tanah dengan kation yang bersifat antibakteri, misalnya logam berat (Rivera-Garza dkk., 2000) [14]. Kation alkali dalam zeolit dapat bergerak bebas, sehingga dapat terjadi pertukaran ion. Kation alkali dilepaskan dari pori dan dipertukarkan dengan ion logam melalui proses adsorpsi (Soedirman dkk., 2002) [15].

Tahapan yang harus dilakukan agar zeolit alam dapat membawa ion logam berat adalah aktivasi zeolit alam dan reaksi zeolit dengan ion logam berat (Lin dkk., 2003). Aktivasi zeolit alam dengan pemanasan dilakukan pada suhu dan lama yang bervariasi. Zeolit alam yang diaktivasi dengan suhu 200 °C selama 1 jam dan direaksikan dengan Cu memiliki daya anti bakteri yang tinggi terhadap *Staphylococcus aureus* (Andhika dkk., 2007) [16]. Reaksi Cu dengan zeolit pada suhu 100 °C menghasilkan daya hambat terbesar terhadap *Staphylococcus aureus* (Widjijono dkk., 2005) [17].

Perak merupakan logam yang banyak digabungkan dengan zeolit sebagai material antibakteri. Resin semen yang mengandung Ag-Zn zeolit menunjukkan efek antimikrobal yang kuat terhadap *S. mutans* (Qian dkk., 1996) [18]. Aplikasi Ag-zeolit sintetis pada *tissue conditioner* mampu menghambat pertumbuhan *C. albicans* (Nikawa dkk., 1997) [19]. Material tumpatan sementara yang mengandung Ag-Zn-zeolit sintetis mempunyai aktifitas antibakteri yang baik terhadap *S. mutans* dan *S. mitis* (Hotta dkk., 1998) [20]. Penelitian terdahulu menunjukkan bahwa Cu-zeolit alam dengan konsentrasi 0,1M dapat menghambat pertumbuhan *Escherichia coli* (Li dkk., 2002). Hasil penelitian menunjukkan bahwa Cu-zeolit alam asal Yogyakarta dengan konsentrasi Cu 0,1M hingga 0,2 M mempengaruhi pertumbuhan *Staphylococcus aureus*. Daya antibakteri terbesar pada konsentrasi Cu 0,2M (Inan, 2005) [21].

Aktifitas antibakteri agen kimiawi dipengaruhi oleh beberapa hal, yaitu konsentrasi efektif agen kimiawi, lama pemaparan, temperatur, keasaman, dan adanya kontaminan (Nolte, 1982). Sifat antibakteri material kedokteran gigi dapat diketahui melalui pemeriksaan dengan metode difusi dalam gel dan *survival tests*. Metode difusi dalam gel dapat dilakukan dengan cara menanam suspensi bakteri pada permukaan media agar, kemudian material antibakteri dimasukkan ke dalam sumuran, diaplikasikan di permukaan,

atau diteteskan pada kertas saring yang kemudian diletakkan di atas media agar. Substansi antibakterial akan menghambat pertumbuhan mikroorganisme pada media agar, sehingga terbentuk zona inhibisi yang tampak translusen (Mjor, 1985) [22].

METODA PENELITIAN

Bahan utama dalam penelitian ini adalah serbuk zeolit alam (Zeoprima, Yogyakarta), serbuk $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (Merck, Jerman), media padat *Muller Hinton Agar/ MHA* (CM 337, Amerika), dan media cair *Brain Heart Infusion/BHI* (CM 225, Inggris). Alat utama penelitian adalah oven (Heraeus, Jerman), *magnetic stirrer* 30 x 8 mm (Bel-Art Products, USA), *stir heat* (Limarec 2 Thesnodyne, USA), corong Buchner, inkubator (Mermert, Jerman), dan jangka sorong digital 0,01 mm (Mitutoyo, Jepang).

Seratus gram serbuk zeolit (ukuran 100 mesh) dipanaskan dalam oven pada suhu 200°C selama 1 jam, kemudian didinginkan pada suhu ruang selama 24 jam. Larutan CuCl_2 dengan konsentrasi 0,05M, 0,1M, 0,15M, 0,2M, dan 0,25M, dibuat dengan mencampur serbuk $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (berat sesuai konsentrasi masing-masing kelompok) dengan 80 mL. Selanjutnya serbuk zeolit direaksikan dengan larutan CuCl_2 . Serbuk zeolit dengan berat 2 gr dimasukkan ke dalam labu alas datar dan ditambahkan larutan CuCl_2 dari masing-masing kelompok, kemudian direaksikan pada suhu 100°C selama 1 jam menggunakan *heat magnetic stirrer*. Setelah reaksi selesai, campuran Cu—zeolit didinginkan hingga suhu kamar. Cu-zeolit yang diperoleh disaring dan dicuci dengan akuades menggunakan corong *Buchner* hingga bebas dari ion Cl. Selanjutnya, Cu-zeolit diletakkan dalam pot porselin dan dikeringkan dalam oven dengan suhu 100°C selama 24 jam, kemudian didinginkan hingga suhu kamar. Cu-zeolit setiap kelompok ditimbang dengan berat 30 gram untuk uji terhadap *S. mutans* (n=5).

Koloni *S. mutans* diambil dari media biakan sebanyak 6 koloni memakai ose, kemudian dimasukkan ke dalam 0,5 mL media cair *BHI* dalam tabung reaksi. Bakteri tersebut kemudian diinkubasi selama 24 jam pada suhu 37°C dalam inkubator. Hasil biakan diencerkan dengan media *BHI* hingga mencapai kekeruhan sesuai standar *Brown III* (10^8 CFU/mL). Suspensi *S. mutans* sebanyak 0,1 mL diambil dengan *cotton bud/swab* dan

diolahkan pada permukaan media agar *MHA* dalam piring petri. Selanjutnya, dibuat 5 lubang sumuran pada media agar (diameter 6 mm). Serbuk Cu-zeolit (30 mg) dimasukkan ke dalam lubang sumuran dan ditambahkan akuades steril dengan volume 50 μL . Media agar diinkubasi selama 24 jam pada suhu 37°C . Zona translusen yang terbentuk disekitar lubang sumuran pada media agar *MHA* diukur diameternya memakai jangka sorong digital. Pembacaan hasil pengukuran zona translusen dilakukan menurut cara Levison & Jawetz (1994). Data lebar zona translusen yang diperoleh dianalisis secara statistik dengan analisis varian satu jalur dan uji HSD (taraf signifikansi 0,05).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Telah dilakukan penelitian tentang pengaruh konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit alam terhadap pertumbuhan *S. mutans*. Nilai rerata dan deviasi standar zona translusen pada *S. mutans* dapat dilihat pada Tabel 1. Daya antibakteri Cu dalam Cu-zeolit terhadap *S. mutans* baru tampak pada konsentrasi Cu 0,10 M dan menunjukkan kecenderungan peningkatan pada konsentrasi yang lebih tinggi.

Uji anava satu jalur untuk mengetahui pengaruh konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit alam terhadap zona translusen pada *S. mutans* dilakukan pada 4 kelompok konsentrasi Cu (0,10M hingga 0,25M) dan hasil rangkumannya dapat dilihat pada Tabel 2. Hasil uji tersebut menunjukkan adanya pengaruh konsentrasi Cu yang bermakna terhadap zona translusen pada *S. mutans* ($p < 0,01$). Hal ini membuktikan bahwa konsentrasi Cu 0,10M hingga 0,25M dalam Cu-zeolit alam berpengaruh terhadap pertumbuhan *S. mutans*. Hasil uji HSD nilai rerata lebar zona translusen pada *S. mutans* menunjukkan adanya perbedaan bermakna ($p < 0,05$) antar sebagian besar kelompok perlakuan (Tabel 3).

Hasil penelitian menunjukkan bahwa Cu-zeolit dengan konsentrasi Cu 0,05M tidak menunjukkan daya anti bakteri terhadap *S. mutans*. Hal ini diperkirakan karena konsentrasi Cu yang keluar dari dalam zeolit tidak cukup efektif untuk menghambat pertumbuhan *S. mutans*. Konsentrasi efektif agen antibakteri merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi aktivitasnya (Nolte, 1982). Konsentrasi Cu 0,1M dalam Cu-zeolit

hingga 0,25M memiliki daya anti bakteri terhadap *S.mutans*.

Zeolit yang membawa Cu memiliki daya antibakteri melalui 2 mekanisme. Mekanisme pertama adalah *Slow release agent*. Cu zeolit melepaskan kation Cu sedikit demi sedikit, kemudian berinteraksi dengan membran sel bakteri yang bermuatan negatif sehingga mengakibatkan rusaknya dinding sel tersebut. Dapat juga terjadi kation Cu berinteraksi dengan protoplasma sel bakteri membentuk senyawa Cu-proteinat sehingga bakteri tidak dapat melakukan metabolisme sel. Mekanisme kedua, bakteri memasuki pori-pori zeolit kemudian berinteraksi dengan kation Cu. Ion Cu mempunyai kemampuan antibakteri sehingga menyebabkan kematian

bakteri tersebut. (Beveridge dkk., 1989 sit. Dede, 2004) [23]. Dalam penelitian ini, diperkirakan hanya mekanisme *slow release agent* saja yang berperan secara maksimal. Bakteri *S.mutan* memiliki ukuran yang lebih besar dari ukuran pori zeolit, sehingga bakteri tersebut tidak dapat masuk tetapi hanya teradsorpsi pada permukaan zeolit.

Konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit tersebut berpengaruh terhadap pertumbuhan *S. mutans*. Konsentrasi Cu yang tinggi memiliki daya anti bakteri yang lebih besar. Adanya muatan positif pada ion Cu dan muatan negatif pada membran sel bakteri akan menyebabkan tarik menarik antara keduanya (Beveridge dkk., 1989 sit. Dede, 2004).

Tabel 1. Rerata dan deviasi standar zona translusen pada *S. mutans* (mm)

Kelompok (Konsentrasi Cu-Zeolit)	Rerata dan Standar Deviasi
A (0,05M)	0,00 ± 0,00
B (0,10M)	16,03 ± 0,47
C (0,15M)	16,45 ± 0,91
D (0,20M)	18,08 ± 0,39
E (0,25M)	18,26 ± 0,68

Tabel 2. Rangkuman anava zona translusen *S. mutans*

Sumber Variasi	Jumlah Kudrat	Derajat Bebas	Rata-rata Kuadrat	F	P
Antar kelompok	19,072	3	6,357	15,218	0,000
Dalam kelompok	6,684	16	0,418		
Total	25,756	19			

Tabel 3. Ringkasan uji HSD zona translusen *S. mutans*

Nilai Rata-rata Kelompok (mm)	Kelompok (Konsentrasi Cu-Zeolit)			
	B (0,10M)	C (0,15M)	D (0,20M)	E (0,25M)
B (0,10M) = 16,03	-	0,422	2,048*	2,226*
C (0,15M) = 16,45	-	-	1,626*	1,804*
D (0,20M) = 18,08	-	-	-	0,178
E (0,25M) = 18,26	-	-	-	-

Keterangan : * = perbedaan bermakna pada p 0,05

Hasil penelitian menunjukkan bahwa Cu-zeolit dengan konsentrasi Cu 0,05M tidak menunjukkan daya anti bakteri terhadap *S. mutans*. Hal ini diperkirakan karena konsentrasi Cu yang keluar dari dalam zeolit tidak cukup efektif untuk menghambat pertumbuhan *S. mutans*. Konsentrasi efektif agen antibakteri merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi aktivitasnya (Nolte, 1982). Konsentrasi Cu 0,1M dalam Cu-zeolit

hingga 0,25M memiliki daya anti bakteri terhadap *S.mutans*.

Zeolit yang membawa Cu memiliki daya antibakteri melalui 2 mekanisme. Mekanisme pertama adalah *Slow release agent*. Cu zeolit melepaskan kation Cu sedikit demi sedikit, kemudian berinteraksi dengan membran sel bakteri yang bermuatan negatif sehingga mengakibatkan rusaknya dinding sel tersebut.

Dapat juga terjadi kation Cu berinteraksi dengan protoplasma sel bakteri membentuk senyawa Cu-proteinat sehingga bakteri tidak dapat melakukan metabolisme sel. Mekanisme kedua, bakteri memasuki pori-pori zeolit kemudian berinteraksi dengan kation Cu. Ion Cu mempunyai kemampuan antibakteri sehingga menyebabkan kematian bakteri tersebut. (Beveridge dkk., 1989 sit. Dede, 2004). Dalam penelitian ini, diperkirakan hanya mekanisme *slow release agent* saja yang berperan secara maksimal. Bakteri *S.mutan* memiliki ukuran yang lebih besar dari ukuran pori zeolit, sehingga bakteri tersebut tidak dapat masuk tetapi hanya teradsorpsi pada permukaan zeolit.

Konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit tersebut berpengaruh terhadap pertumbuhan *S. mutans*. Konsentrasi Cu yang tinggi memiliki daya anti bakteri yang lebih besar. Adanya muatan positif pada ion Cu dan muatan negatif pada membran sel bakteri akan menyebabkan tarik menarik antara keduanya (Beveridge dkk., 1989 sit. Dede, 2004). Mekanisme kerja dari logam berat dalam aktivitas antimikroba karena adanya efek oligodinamik. Logam berat menunjukkan efek antimikrobal dengan mengkoagulasi protein dan bereaksi dengan gugus SH (sebagai enzim) dan menginaktivasinya (Nolte, 1982). Banyaknya ion Cu yang terlepas menyebabkan bakteri yang terbunuh semakin banyak, sehingga memperbesar zona translusen atau zona hambat pada *S. mutans*.

Konsentrasi zat antibakteri merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi penghambatan atau pembasmian mikroorganisme oleh bahan antibakteri. Semakin tinggi konsentrasi zat anti bakteri maka semakin banyak bakteri yang mati (Pelczar & Chan, 1988) [24]. Namun demikian, hasil penelitian menunjukkan tidak adanya perbedaan daya anti bakteri yang bermakna antara konsentrasi Cu 0,10M dan 0,15 M serta 0,20 M dan 0,25M.

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut mengenai konsentrasi atau jumlah Cu yang ada di dalam zeolit alam. Hal ini akan mempengaruhi jumlah Cu yang lepas atau keluar dari zeolit dan kemampuannya untuk menghambat pertumbuhan mikroorganisme. Selain itu, perlu juga diteliti lebih lanjut mengenai kecepatan pelepasan Cu dari zeolit pada lingkungan dengan konsentrasi mikroorganisme tertentu. Hal ini diperlukan dalam mempertimbangkan lama kontak Cu-zeolit dengan mikroorganisme untuk menghasilkan daya antibakteri yang optimal.

KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan diketahui bahwa konsentrasi Cu dalam Cu-zeolit alam berpengaruh terhadap daya antibakteri pada *S. mutans*. Konsentrasi Cu 0,01M dalam Cu-zeolit alam telah memiliki daya antibakteri terhadap *S. mutans* dan daya antibakteri tertinggi pada kelompok konsentrasi 0,20M.

DAFTAR PUSTAKA

1. Marsh, P., Martin, MV., 2000, *Oral microbiology*, 4th ed., Butterworth-Heinemann, Oxford, 1-4, 96-100, 153-156.
2. Nolte, WA., 1982, *Oral microbiology*, 4th Ed., The CV Mosby Co., St. Louis, 68-75, 287, 302-305, 523-532.
3. Combe EC., 1992, *Notes on Dental Materials*, 6th ed., Churchill Livingstone, New York, 77-88.
4. Powers, JM., Sakaguchi, RL., 2006, *Craig's Restorative Dental Materials*, 12th Ed., Mosby Elsevier, St.Louis, 162-175.
5. Jenkin, M.R., Gilles, G.C., 2001, *Emerging antimicrobial technology offers broad control of pathogenic microorganism*, <http://www.Apvron.com/pdfs/wep-wb.pdt.>, 20/12/2004.
6. Harjanto, S., 1987, *Lempung, Zeolit, Dolomit & Magnesit*, Pertambangan dan Energi, no.29 (edisi khusus). 108-166, Direktorat Jenderal Geologi dan Sumberdaya Mineral, Departemen Pertambangan dan Energi Republik Indonesia, Jakarta. 108-166.
7. Lin, H., Li, TX., Zong, C., Wang, S., 2003, The preparation and application of the bacteriostatic inorganic materials for environment decontamination, *Proceeding German-Chinese-Polish Symposium Environmental Engineering*, Beijing, 579-589.
8. Li, B., Yu, S., Hwang, JY., Shi, S., 2002, Antimicrobial vermiculit nanomaterial, *J of Mineral and Material Characteristization & Engineering*, 1(1):61-67.
9. Suhala, S., Arifin, M., 1997, *Zeolit*, dalam Suhala & Arifin, *Bahan Galian Industri Pusat Penelitian dan Pengembangan Teknologi Mineral*, Bandung, 320-338.

10. Sutarti, M., Rachmawati, M., 1994, *Zeolit Tinjauan Literatur*, Cetakan 1, Pusat dokumentasi dan informasi ilmiah Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia, Jakarta, 2 – 45.
11. Tri Sunaryanti, W., Shiba, R., Miura, M., Nomura, M., Nishiyama, N., Matsukata, M., 1996, Characterization and modification of Indonesian Natural Zeolite and their properties for hydrocracking of paraffin, *J. Jpn. Petro* 1:20-25 (abstract).
12. Eddy, H., 2004, *Potensi dan pemanfaatan zeolit di Propinsi Jawa Barat dan Banten*, Sumber Daya Mineral, Dirjen Geologi dan Sumber Daya Mineral Republik Indonesia.
13. Idrus A, Titisari AD, Sudiyo R, Soekrisno R, 2006, Development of a zeolites-based industry through an integrated study on characterization, quality improvement and utilization as additive fertilizer materials of natural zeolite deposits from Yogyakarta, Indonesia, *Proceeding Final Report Hi-Link Project Research 2006*, 1-14.
14. Riveira-Garza, M., Olquin, MT., Garcia-Sosa, D., Alcantara, D., Rodriguez-Fuentes, G., 2000, Silver supported on natural Mexican zeolite as an antibacterial material, *Microporous and mesoporous materials*, 39:431-444.
15. Soediman, S., Moegiardjo, Pitoatmadja, YD., Nyotohadi, SA, 2002, Penetapan kandungan zeolit serta daya jerap batuan vulkanik dari Bandung, Malang, dan Tulungagung dibanding attapulgit, *Artocarpus*, 2(2):85-96.
16. Andhika, Siti Sunarintyas, Widjijono, 2007, Pengaruh lama aktivasi panas zeolit terhadap daya antimikroba Cu-zeolit pada *Staphylococcus aureus*, *MI Kedokteran Gigi*, 20 (4) : 128-133.
17. Widjijono, Dyah Irnawati, Angga Febriharta, 2005, Korelasi antara suhu reaksi dan daya antibakteri Cu-Zeolit terhadap *Staphylococcus aureus*, *MIKGI, FKG UGM*, 13 : 378-380.
18. Qian, X., Nguyen, TT., Tobia, D., 1996, Antimicrobial and mechanical properties of resin cements containing Silver-Zinc Glass or zeolite, *IADR Abstract*.
19. Nikawa, H., Yamamoto, T., Hamada, T., Rahardjo, MB., Murata, H., Nakanoda, S., 1997, Antifungal effect of zeolite-incorporated tissue conditioner against *Candida albicans* growth and/or acid production, *J. Oral Rehabil*, 24(5):350-7.
20. Hotta, M., Nakajima, H., Yamamoto, K., Aono, M., 1998, Antibacterial temporary filling materials: the effect of adding various ratios of Ag-Zn-zeolite, *J. Oral Rehabil.*, 25(7): 485-9.
21. Inan, C.W., 2005, *Pengaruh konsentrasi Cu pada Cu-zeolit terhadap daya anti bakteri pada Staphylococcus aureus*, Fakultas Kedokteran Gigi UGM, Skripsi.
22. Mjor IA, 1985, *Dental materials: Biological properties and clinical evaluations*, CRC Press Inc., Florida, 58-61.
23. Dede E., 2004, *Cu-Montmorillonit sebagai bahan antibakteri E.coli*, Skripsi Fakultas MIPA UGM, Yogyakarta, hal 38-40.
24. Pelczar, MJ., Chan, EC., 1988, *Dasar-dasar mikrobiologi II*, UI Press, Jakarta 452-458, 480-490.

EKSTRAKSI ALUMINA DARI RESIDU BAUKSIT UNTUK BAHAN BAKU ZEOLIT SINTETIS DENGAN PRODUK SAMPING KONSENTRAT BESI

Muchtar Aziz

Puslitbang Teknologi Mineral dan Batubara
Jl. Jend.Sudirman No. 623, Bandung
Email: muchtar@tekmira.esdm.go.id

ABSTRAK

Ekstraksi alumina dari bijih bauksit Kalimantan Barat (mengandung sekitar 45% Al_2O_3 dan 16% Fe_2O_3) telah dilakukan, menghasilkan alumina dan residu bauksit (red mud). Residu masih mengandung alumina sekitar 20% dan besi (Fe_2O_3) sekitar 37%. Residu selanjutnya diproses melalui pemanggangan atau pensinteran dengan campuran soda-kapur (lime-soda sinter process) pada suhu 800-1100°C. Sinter dilarutkan dalam larutan sodium karbonat encer menghasilkan larutan sodium aluminat ($2NaAlO_2$) dan residu pelarutan. Larutan dipresipitasi menghasilkan endapan aluminium hidrat ($Al(OH)_3$) yang dapat dimanfaatkan sebagai bahan baku zeolit sintetis. Residu pelarutan dikonsentrasi mineral besinya dengan magnetik separator 1000 gauss, menghasilkan konsentrat besi sebagai produk samping. Hasilnya menunjukkan sekitar 75-85% alumina dapat diekstraksi atau diperoleh kembali dari residu bauksit dengan kadar 98,7% Al_2O_3 , dan juga dihasilkan konsentrat besi berkadar 66% Fe_2O_3 (46% Fe) dengan perolehan 40 % sebagai produk samping.

Kata kunci : bauksit, alumina, residu bauksit, pensinteran, aluminium hidrat

ABSTRACT

EXTRACTION OF ALUMINA FROM BAUXITE RESIDUE FOR PREPARATION OF SYNTHETIC ZEOLITE WITH FERRUM CONCENTRATE AS BY PRODUCT. Extraction of alumina from bauxite West Kalimantan (containing 45% of Al_2O_3 and 16% of Fe_2O_3) has been conducted, it is produce a alumina and bauxite residue (red mud). The residues were still containing alumina about 20% and ferrum (Fe_2O_3) about 37%. On further, residues processed through baking or sintering with mixture of soda and lime (lime-soda sinter process) at temperature of 800°-1100°C. Sintering wh ich dissolved on dilute solution of sodium carbonate, was produces a aluminum hydrate ($2NaAlO_2$) and residue of dissolution. Dipresipitasi solution produces aluminum hydrate precipitate ($Al(OH)_3$) that can be utilized as a raw material of synthetic zeolite. Ferrum minerals on residues dissolution was concentrated with 1000 gauss magnetic separator that produces a ferrum concentrate as a side effect. The result showed that alumina about 75% to 85% could be extracted or recovered from residues of bauxite with 98.7% of Al_2O_3 , and also it was produced a ferrum concentrate grades 66% of Fe_2O_3 (46 % Fe) with acquisition of 40% as a side product.

Keywords: bauxite, alumina, bauxite residues, sintering, aluminum hydrate

PENDAHULUAN

Indonesia memiliki sumberdaya bauksit yang potensial terutama di Kalimantan Barat, dan juga di P. Bintan dan sekitarnya. Bijih bauksit Kalimantan Barat mengandung senyawa utama : Al_2O_3 44,79%, Fe_2O_3 15,76%, SiO_2 1,56%, dan TiO_2 1,11%. Pemrosesan bauksit (dengan proses Bayer) telah dilakukan dan menghasilkan alumina serta residu bauksit (red mud). Residu bauksit masih mengandung Al_2O_3 sekitar 20% dan Fe_2O_3 sekitar 37% .

Berbagai upaya pemanfaatan residu bauksit untuk dapat digunakan kembali (re-used) telah dilakukan orang di berbagai negara yang memiliki industri alumina, di antaranya di Australia (Sharif, 2005) [1]. Di Australia

tidak kurang dari 30 juta ton residu bauksit terakumulasi setiap tahunnya (40% dari produksi dunia), berbagai upaya penelitian untuk pemanfaatan telah dilakukan dan sampai saat ini masih terus berlangsung.

Penelitian untuk memperoleh kembali alumina (Al_2O_3) dari residu bauksit Kalimantan Barat telah dilakukan melalui proses sinter soda-kapur; meliputi : pensinteran (sintering) residu dengan campuran soda-kapur pada suhu 800-1200°C yang menghasilkan sinter sodium aluminat ($2NaAlO_2$), pelarutan sinter, pemisahan larutan sodium aluminat, dan pengendapan larutan sodium aluminat menghasilkan aluminium hidrat ($Al(OH)_3$). Aluminium hidrat dapat dimanfaatkan sebagai bahan baku (sumber aluminium) zeolit sintetis. Residu

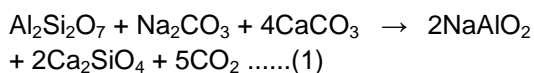
pelarutan dikonsentrasi dengan *magnetic separator* menghasilkan konsentrat besi sebagai produk samping.

Tujuan penelitian adalah menghasilkan aluminium hidrat dari residu bauksit Kalimantan Barat melalui proses sinter soda-kapur untuk bahan baku zeolit sintetis, serta konsentrat besi sebagai produk samping.

Zeolit sintetis merupakan senyawa aluminosilikat hidrat yang dibuat dan memiliki karakteristik seperti zeolit alam dengan homogenitas lebih baik. Saat ini zeolit sintetis telah semakin luas penggunaannya di berbagai industri penting seperti katalis dalam perengkahan senyawa hidrokarbon pada pengilangan minyak bumi, pemisah fruktosa-glukosa, pemisah monosakarida, sintesis *ethylbenzene*, produksi *synfuel*, *dewaxing*, dan sebagainya. Pembuatan zeolit sintetis memerlukan dua bahan baku utama, yaitu sebagai sumber Al dan sebagai sumber Si. Aluminium hidrat merupakan salah satu sumber Al, biasanya sudah berupa garam Al ($Al_2(SO_4)_3$ atau $Al(NO_3)_3$) dan sebagai sumber Si biasanya digunakan senyawa sodium silikat.

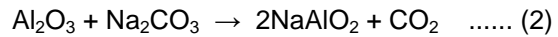
FUNDAMENTAL

Beberapa peneliti terdahulu diantaranya Padilla (1985) [2] dan Alp (2000) [3] telah menggunakan metode proses sinter soda-kapur (*lime-soda sinter process*) untuk memperoleh alumina dari material aluminosilikat. Dalam proses sinter soda-kapur, aluminosilikat direaksikan dengan kapur (CaO) atau gamping ($CaCO_3$) dan sodium karbonat (Na_2CO_3) pada suhu tinggi ($800-1200^{\circ}C$) untuk membentuk sodium aluminat ($Na_2O \cdot Al_2O_3$ atau $2NaAlO_2$) larut dalam larutan alkalin (Na_2CO_3 atau NaOH) dan dikalsium silikat (Ca_2SiO_4) tidak larut dalam larutan yang sama. Pernyataan yang disederhanakan untuk reaksi pensinteran yang dipakai para peneliti terdahulu untuk material lempung dapat ditulis sebagai berikut [Padilla, 1985] :

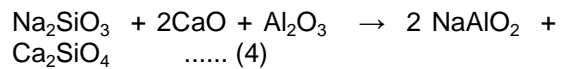


Untuk bijih alumina (*aluminous ores*), Al_2O_3 bereaksi dengan Na_2CO_3 pada suhu sekitar $1000^{\circ}C$ membentuk sodium aluminat. Dalam bijih alumina yang mengandung SiO_2 , sodium karbonat juga bereaksi dengan SiO_2 dalam sinter membentuk sodium silikat (Na_2SiO_3) larut. Pernyataan sederhana reaksi

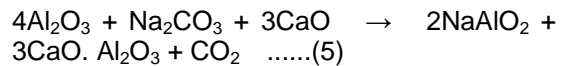
pensinterannya sebagai berikut [Habashi, 1997] :



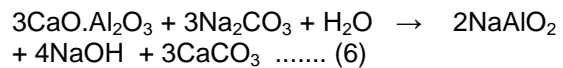
Jika didalam umpan pensinteran ditambahkan CaO, sodium silikat bereaksi dengan CaO dan Al_2O_3 membentuk senyawa sodium aluminat larut dan dikalsium silikat tidak larut. Pernyataan sederhana reaksinya sebagai berikut (Padilla, 1985) :



Variasi dalam sintering terjadi, kalsium menggantikan sodium sehingga terbentuk kalsium aluminat ($3CaO \cdot Al_2O_3$). Pernyataan sederhana reaksinya sebagai berikut (Habashi, 1997) [4] :



Dalam pelarutan sinter dengan larutan sodium karbonat, kalsium aluminat bereaksi dengan sodium karbonat membentuk sodium aluminat dan residu padat kalsium karbonat ($CaCO_3$). Pernyataan sederhana reaksinya sebagai berikut (Habashi, 1997) :



METODOLOGI

Residu dari pemrosesan bauksit dipreparasi dengan mencampurkan kapur tohor (CaO) dan sodium karbonat (Na_2CO_3) dalam jumlah stoikiometri berlebih 10%, dibentuk pelet dan dikeringkan. Pensinteran pelet pada variasi suhu : 800 sampai $1100^{\circ}C$. Sinter dilarutkan dalam larutan sodium karbonat encer (1-2% berat Na_2CO_3) pada suhu kamar dengan pengadukan untuk memperoleh larutan sodium aluminat ($Na_2O \cdot Al_2O_3$). Larutan dipisahkan dari residunya melalui filtrasi. Residu dicuci dengan akuades sebanyak 2 kali. Filtrat dan residu dianalisis kimia untuk mengetahui komposisinya. Hasil analisis kimia residu bauksit, filtrat, dan filtrat pencucian digunakan untuk menghitung perolehan alumina. Residu pelarutan dikonsentrasi dengan *magnetic separator* 1000 gauss menghasilkan konsentrat besi sebagai produk samping, dan dianalisis kimia untuk mengetahui kadar dan perolehannya (lihat Gambar 1).

HASIL DAN DISKUSI

Residu bauksit

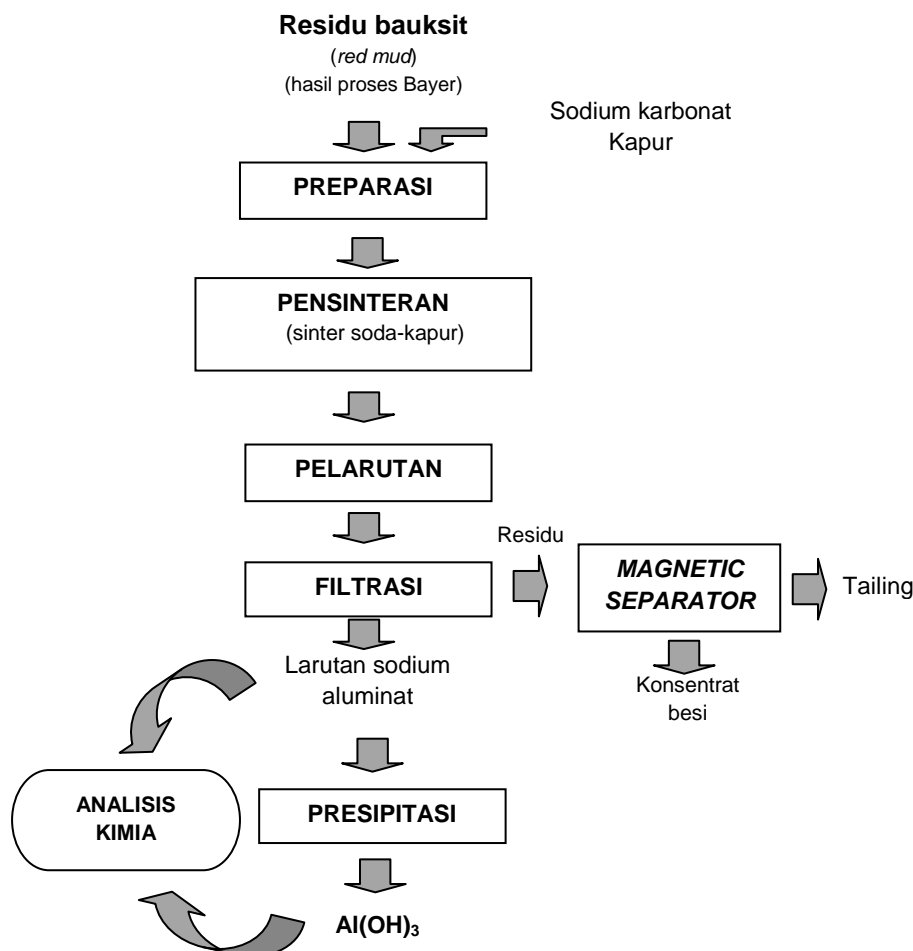
Pengamatan mikroskopik dilakukan terhadap sayatan tipis fraksi kasar residu bauksit. Hasil pengamatan menunjukkan sebagian mineral besi masih terikat pada butiran gipsit 0,6 mm (sekitar 40 mesh) dan sebagian lagi sudah terliberasi seperti ditunjukkan pada Gambar 2 (Sutanto, 2008) [5].

Komposisi kimia bauksit Kalimantan Barat serta residunya ditunjukkan pada Tabel 1. Residu bauksit hasil ekstraksi alumina dari bijih bauksit dengan proses Bayer masih mengandung alumina sekitar 20% dan

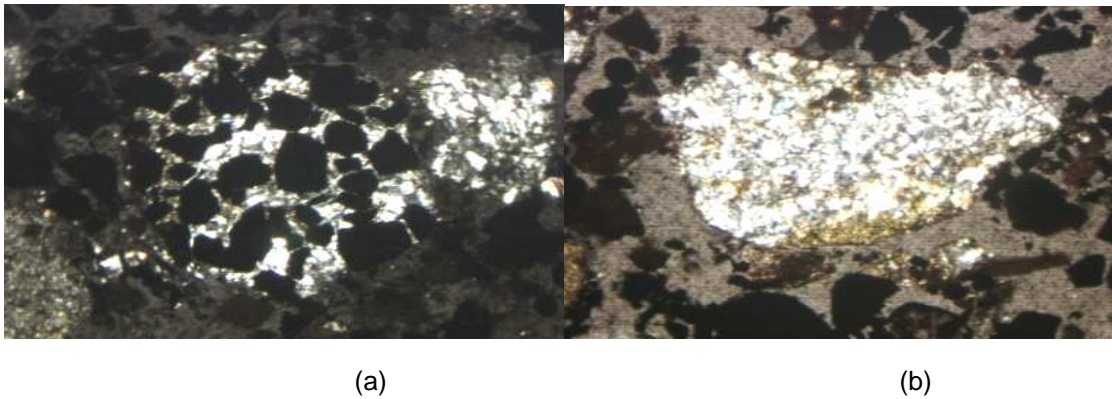
kandungan besi (Fe_2O_3) yang meningkat yaitu sekitar 37%.

Larutan sodium aluminat

Alumina terekstraksi pada pelarutan sinter residu bauksit ditunjukkan pada Gambar 3. Pensinteran pada variasi suhu (800, 900, 1000, 1100°C) telah menunjukkan jumlah alumina terlarut atau terekstraksi terbanyak sebesar 75%. Jumlah ini merupakan hasil tertinggi yang dicapai pada suhu 800°C, dan pelarutan pada persen padatan 11,8%. Pada suhu 900-1100°C ekstraksinya menurun yaitu menjadi 50% pada suhu 900°C dan 45% pada suhu 1100°C.



Gambar 1. Bagan alir pemrosesan residu bauksit untuk memperoleh aluminium hidrat ($\text{Al}(\text{OH})_3$) sebagai bahan baku zeolit sintesis, serta konsentrat besi sebagai produk samping



Gambar 2. Fotomikrograf residu bauksit ; (a) : tampak satu butir gipsit (warna terang) ukuran 0,60 mm berikatan dengan butiran-butiran mineral logam/besi (warna hitam), (b): tampak satu butir gipsit (warna terang) dalam keadaan sudah terliberasi

Tabel 1. Komposisi kimia bauksit dan residu bauksit

Komponen	Bauksit (%)	Residu bauksit (%)
SiO ₂	1,56	3,40
Al ₂ O ₃	44,79	20,17
Fe ₂ O ₃	15,76	37,48
MnO	0,06	0,16
MgO	ttd	0,14
CaO	0,02	0,06
Na ₂ O	ttd	3,03
K ₂ O	ttd	ttd
TiO ₂	1,11	3,43
P ₂ O ₅	0,09	0,09
H ₂ O	36,04	31,21

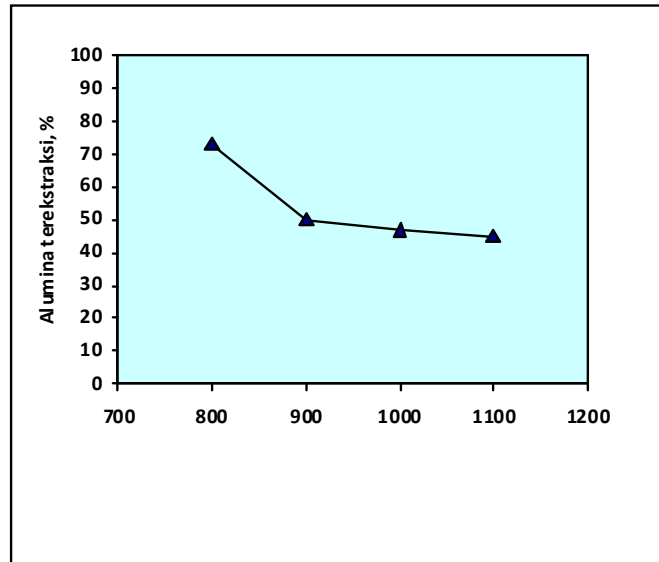
Alumina terekstraksi sebagai fungsi waktu pensinteran ditunjukkan pada Gambar 4. Hasil ekstraksi menunjukkan, pensinteran pada 800°C alumina terekstraksi tertinggi diperoleh 85,20%, yaitu pada waktu ½ jam.

alumina turun menjadi 47% pada waktu 1 jam dan menjadi 25% pada waktu 4 jam. Konsentrasi unsur-unsur utama terlarut dalam larutan sodium aluminat ditunjukkan pada Tabel 2.

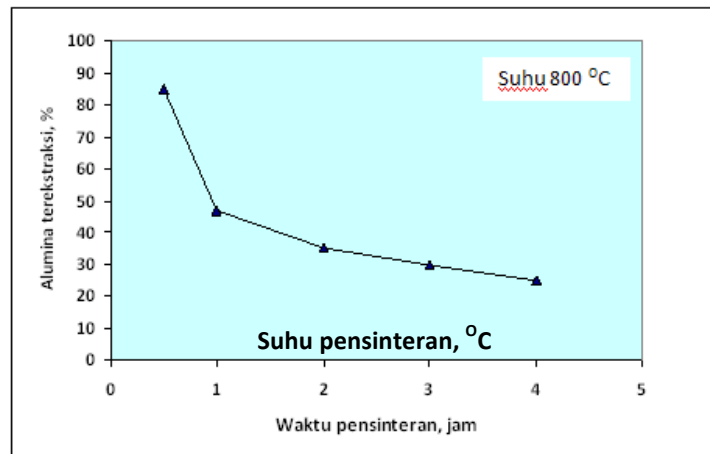
Waktu yang lebih lama dalam interval 1-4 jam cenderung menurunkan ekstraksi, ekstraksi

Tabel 2. Konsentrasi unsur-unsur utama terlarut dalam larutan sodium aluminat

No.	Al (10 ³ ppm)	Na (10 ³ ppm)	Si (ppm)	Fe (ppm)	Ca (ppm)
1.	50,41	32,39	0,37	1,95	1,74
2.	52,22	31,42	0,34	1,76	1,66
3.	51,71	36,11	0,32	1,54	1,77



Gambar 3. Alumina terekstraksi hasil pensinteran dengan variasi waktu



Gambar 4. Alumina terekstraksi pada pelarutan hasil pensinteran 800°C dengan variasi waktu

Hasil pelarutan diatas menunjukkan bahwa proses sinter soda-kapur terhadap residu bauksit menghasilkan sinter mengandung senyawa sodium aluminat (NaAlO_2) mudah larut dalam larutan sodium karbonat encer, menghasilkan larutan sodium aluminat ($\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$), meninggalkan residu padat.

Presipitat aluminium hidrat

Komposisi kimia aluminium hidrat hasil presipitasi larutan sodium aluminat dan alumina anhidratnya setelah dikalsinasi ditunjukkan pada Tabel 3. Kandungan alumina dalam aluminium hidrat sekitar 64,5% Al_2O_3 setara dengan alumina anhidrat hasil kalsinasi 98,67% Al_2O_3 . Komposisi kimia alumina impor (dari Australia) ditunjukkan pada Tabel 4. Nampak kandungan Al_2O_3 hasil

ekstraksi yaitu sekitar 98,67% dapat memenuhi kualitas impor.

Konsentrat besi sebagai produk samping

Besi dalam residu pelarutan dipisahkan dengan *magnetic separator* intensitas 1000 gauss menghasilkan konsentrat besi berkadar sekitar 58-62% Fe_2O_3 . Tabel 5. menunjukkan Komposisi kimia senyawa-senyawa utama konsentrat besi. Kandungan dan perolehan Fe_2O_3 konsentrat besi hasil pensinteran dengan variasi waktu ditunjukkan pada Gambar 5. Dalam interval waktu 1-4 jam kadar dan perolehan besi cenderung menurun dengan bertambahnya waktu pensinteran. Perolehan tertinggi didapat pada waktu pensinteran ½ jam yaitu sekitar 40%. Konsentrat besi ini masih memerlukan peningkatan kadar lebih lanjut.

Tabel 3. Komposisi kimia aluminium hidrat ($\text{Al}(\text{OH})_3$) dan anhidratnya hasil presipitasi larutan sodium aluminat

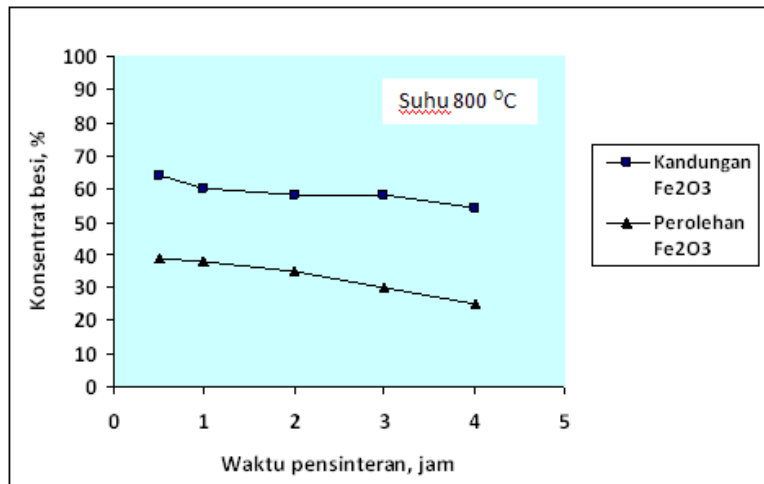
No.	Na_2O (%)	CaO (%)	Al_2O_3 (%)	Fe_2O_3 (%)	TiO_2 (%)	SiO_2 (%)	H_2O (%)	Al_2O_3 anhidrat (%)
1.	0,43	0,048	64,52	0,007	0,002	0,014	34,96	98,67
2.	0,45	0,047	64,53	0,008	0,003	0,012	34,95	98,69
3.	0,41	0,049	64,52	0,009	0,001	0,011	34,96	98,67

Tabel 4. Komposisi kimia alumina impor

Na_2O (%)	CaO (%)	Al_2O_3 (%)	Fe_2O_3 (%)	TiO_2 (%)	SiO_2 (%)
0,42	0,043	98,7	0,010	0,002	0,016

Tabel 5. Komposisi kimia (*major compound*) konsentrat besi

No.	Fe_2O_3 (%)	Al_2O_3 (%)	SiO_2 (%)	TiO_2 (%)
1.	61,91	17,79	3,53	9,70
2.	59,16	18,81	4,22	8,91
3.	58,23	21,04	4,14	9,33



Gambar 5. Konsentrat besi hasil pemisahan pada residu pelarutan sinter dengan *magnetic separator* 1000 gauss

KESIMPULAN

Sebanyak 75-85% alumina dapat diperoleh kembali dari residu bauksit melalui proses sinter soda-kapur pada suhu 800°C , dan pelarutan dengan sodium karbonat encer pada suhu kamar.

Ekstraksi alumina tertinggi dari residu bauksit diperoleh sebesar 85,20% pada kondisi sebagai berikut : suhu pensinteran 800°C ,

waktu $\frac{1}{2}$ jam, pelarutan pada suhu kamar, persen padatan dalam pelarutan 11,8%, dan pengadukan selama 2 jam. Kadar alumina yang dihasilkan mencapai 98,67% Al_2O_3 , telah dapat menyamai alumina impor.

Suhu dan waktu pensinteran sangat berpengaruh pada perolehan alumina dari residu bauksit. Pensinteran pada suhu yang lebih tinggi dari 800°C cenderung menurunkan ekstraksi alumina. Demikian pula waktu

pensinteran yang lebih lama juga cenderung menurunkan ekstraksi alumina.

Melalui proses sinter soda-kapur ini dapat diperoleh pula konsentrat besi berkadar 66% Fe₂O₃ dengan perolehan 40% sebagai produk samping.

DAFTAR PUSTAKA

1. Sharif, 2005, *Towards Zero Wastes*, Sharif.Jahanshahi@csiro.au, CSIRO Mineral.
2. Padilla R. and Sohn H.Y., 1985, Sintering Kinetics and Alumina Yield in Lime-Soda Sinter Process for Alumina from Coal Wastes, *Metallurgical Transactions B*, Vol 16B, June 1985 – 385.
3. Alp A. and Aydin A.O., 2002, The Investigation of Efficient Conditions for Alumina Production from Diasporic Bauxites, *Canadian Metallurgical Quarterly*, Vol 41, No.1, pp 41-46.
4. Habashi, 1997, *Handbook of Extractive Metallurgy*, vol.II, Wiley-VCH.
5. Sutanto A., 2008, Hasil pengamatan mikroskopis sayatan tipis residu bauksit, laporan internal penelitian bauksit Kalbar.

REKAYASA MINERAL ZEOLIT DENGAN TEKNIK WET IMPREGNATION LOGAM INHIBITOR SEBAGAI BAHAN DASAR ANTI-SEPTIK DENGAN METODE ALIRAN KONTINYU

Lenny Marilyn Estiaty

Pusat Penelitian Geoteknologi LIPI,
Komplek LIPI Jl. Sangkuriang Gd.70, Bandung 40135
Telp: (62)-22-2503654
Email: lenny@geotek.lipi.go.id

ABSTRAK

Mineral industri, seperti zeolit alam dapat direkayasa menjadi bahan dasar dalam pembuatan produk obat-obatan, khususnya sebagai obat antiseptik. Zeolit dengan sifat struktur kristalnya dapat berfungsi sebagai antiseptic carrier, dimana bahan aktif akan disimpan di dalam struktur kristal zeolit dan pada kondisi tertentu akan berfungsi atau keluar dari kerangka struktur induknya. Zat aktif tersebut berupa logam inhibitor, dengan konsentrasi yang sangat rendah mampu bersifat toksik terhadap plasma sel mikroba. Penggunaan zeolit alam sebagai antiseptic carrier dengan logam inhibitor Cu belum dikembangkan. Pada penelitian ini, bahan antiseptik tersebut dibuat melalui metode impregnasi, dengan cara aliran kontinyu, yaitu memasukkan senyawa atau unsur logam ke dalam struktur kristal tanpa merubah struktur kristal tersebut. Teknik impregnasi dilakukan melalui proses pemurnian dan modifikasi zeolit alam menjadi zeolit-H sehingga mudah disubstitusi oleh logam Cu. Hasilnya adalah semakin banyak logam K, Na, Ca, Mg yang keluar dari zeolit, pembuatan zeolit-H semakin sempurna sehingga penanaman logam Cu menjadi maksimal. Proses pemurnian, modifikasi dan impregnasi tidak merubah bentuk kristal zeolit, dan tidak terjadi degradasi pada puncak-puncak mordenit, sehingga diharapkan sifat alamiah dari zeolit tidak berubah, sehingga mampu berfungsi sebagai antiseptic carrier. Uji daya serap dan uji daya pertumbuhan bakteri dilakukan untuk menguji bahan antiseptik tersebut terhadap bakteri dan jamur. Hasil yang didapat bahwa zeolit-Cu sudah berhasil dibuat walaupun belum optimal. Daya serap zeolit alam lebih tinggi daripada daya serap zeolit-Cu, hal ini disebabkan karena daya serap dari zeolit-Cu terganggu dikarenakan masuknya logam Cu. Penghambatan pertumbuhan bakteri maupun jamur lebih banyak terjadi pada media yang ditambahkan zeolit-Cu. Hal ini disebabkan karena daya hambat dari zeolit-Cu sudah berfungsi.

Kata kunci: Impregnasi, zeolit-Cu, antiseptic carrier, mikroba patogen, daya hambat

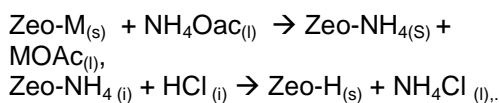
ABSTRACT

ENGINEERING OF ZEOLITE MINERAL WITH WET IMPREGNATION INHIBITOR METAL METHOD AS RAW MATERIAL OF ANTISEPTIC BY CONTINUOUS FLOW METHOD. Industrial minerals, such as natural zeolite can be engineered into raw materials on manufacturing of medical products, especially as an antiseptic. Zeolite with the crystal structure characteristic could be function as an antiseptic carrier and active substances would be saved on crystal structure of zeolite which was on certain circumstances will be work or out of the frame structure. The active substances are an inhibitor metal with low concentration and could be a toxic for microbial cell plasma. The used natural zeolite as an antiseptic carrier with inhibitor metal Cu has not yet developed. In this study, antiseptic substances has made by impregnation method with flow continuously were a compound or metal substances put in crystal structure without changing the crystal structure. The impregnation conducted by purification process and modification of natural zeolite become a zeolite-H in order easily to substituted by Cu metal. The products is much metals K, Na, Ca, Mg out from zeolite making a Zeolite-H was perfect, so the planting of Cu metals was maximum. The purification, modification, and impregnation process did not change the shape of crystal zeolite, and degradation do not occur on modernite peaks so expected the characteristic from zeolite does not change so it is could be functions as antiseptic carrier. Absorption test and power test of bacterial growth was conducted to try the antiseptic substances against bacteria and fungi. The result that zeolite-Cu had been successfully made although not optimal. The absorption capacity of natural zeolite is higher than the absorption capacity of zeolite-Cu, because the absorption capacity of zeolite-Cu was disrupted by entry of metal Cu. Inhibition of bacteria and fungi growth occurs more on media with addition zeolite-Cu. It was because the inhibition of zeolite-Cu already functioning.

Keywords: the impregnation, zeolite-cu, antiseptic carrier, microbial pathogens, inhibition

PENDAHULUAN

Zeolit adalah mineral yang mempunyai struktur kristal yang sangat unik yaitu mudah diatur, sehingga sifat zeolit dapat dimodifikasi sesuai dengan keperluan pemakai. Karena keistimewaan tersebut maka zeolit dapat dipakai dalam berbagai bidang kegiatan seperti bidang peternakan, pertanian, kedokteran/kesehatan, lingkungan, industri bahan bangunan dan lain-lain. Sebelum digunakan umumnya zeolit alam harus ditingkatkan dulu mutunya. Untuk meningkatkan mutu zeolit alam Indonesia dalam upaya memperoleh nilai tambah yang lebih besar maka dilakukan pemurnian, aktivasi dan modifikasi. Peningkatan mutu ini dimaksudkan untuk memperbesar kemampuan zeolit baik dari segi daya pertukaran ion, daya katalisnya, daya absorpsi, maupun daya saring molekulnya. Zeolit-H adalah zeolit alam yang telah dimodifikasi sehingga mempunyai situs asam. Zeolit-H ini dibuat agar mudah disubstitusi oleh logam. Pembuatan zeolit-H dilakukan melalui pemurnian zeolit alam yang dilanjutkan dengan pembuatan zeolit- NH_4 , seperti reaksi dibawah ini:



Dewasa ini penggunaan antiseptik dalam rumah tangga dinilai sudah berlebihan, karena selain membunuh bakteri juga membunuh semua mikro organisme yang diperlukan sehingga dapat mengganggu keseimbangan ekosistem. Oleh karena itu diperlukan suatu bahan antiseptik yang ramah lingkungan. Dalam konteks ini, bahan antiseptik tersebut didefinisikan sebagai bahan antiseptik yang dapat menekan secara selektif pertumbuhan mikroba perusak atau jamur yang dinilai merugikan. Secara teknis bahan antiseptik tersebut dibuat melalui metode impregnasi, dengan cara aliran kontinyu, yaitu memasukkan senyawa atau unsur logam kedalam struktur kristal tanpa merubah struktur kristal tersebut. Beberapa jenis logam inhibitor yang dapat digunakan dalam impregnasi, antara lain Ag, Cu, Zn, Hg, Sn, Pb, Bi, Cd, Cr, dan Ti, karena logam-logam tersebut mempunyai spektrum yang luas sebagai anti mikroba. Logam inhibitor yang dimpregnasikan di dalam zeolit, jika dikontakkan ke dalam sistem sel mikroba dapat merusak sistem enzim dan plasma sel, sehingga dapat berfungsi sebagai bahan pencegah secara selektif pertumbuhan

mikroba perusak atau jamur yang dinilai merugikan. Untuk menguji bahan antiseptik tersebut terhadap bakteri dan jamur maka dilakukan uji daya serap dan uji daya pertumbuhan bakteri. Kebutuhan bahan baku industri farmasi maupun industri kosmetik di Indonesia hingga kini masih bergantung kepada bahan baku impor, yang berdampak terhadap cadangan devisa negara. Pemanfaatan mineral zeolit alam sebagai bahan antiseptik diharapkan dapat memberikan kontribusi dalam mengurangi ketergantungan bahan baku farmasi impor, oleh karena itu penelitian ke arah tersebut menjadi penting (*urgent*) untuk dilakukan.

Tujuan penelitian disini adalah memperoleh teknologi proses pembuatan material antiseptik berbasis zeolit dengan logam inhibitor Cu serta mengetahui efek toksik dari zeolit-Cu terhadap mikroba patogen (*E-Coli* dan *Candida albican*).

TINJAUAN PUSTAKA

Kristal zeolit, dibentuk oleh oleh tetrahedral $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$ melalui jembatan oksigen (-Si-O-Al-). Substitusi Si (IV) oleh Al (III) dalam tetrahedral mengakibatkan muatan negatif dalam struktur. Tetrahedron tersebut membentuk kerangka tiga dimensi yang membentuk banyak ruang terbuka membentuk lorong yang saling terkoneksi, rongga tersebut biasanya diisi oleh molekul air dan kation yang menempel pada posisi *negative charge* dari struktur tetrahedral. Kation penetral di dalam struktur zeolit alam terdiri dari gol I dan II (K, Na, Ca, Ba dan Mg). Menurut konsep Lewis-Bronsted, tetrahedral merupakan molekul dengan situs basa karena dapat berfungsi sebagai donor pasangan elektron atau akseptor proton. Sedangkan gugus penetral dari golongan alkali tanah bersifat sebagai situs asam atau donor proton. Dalam kondisi netral (kristal zeolit) situs asam dari kation penetral, posisinya tidak mudah disubstitusi oleh kation Cu karena logam inhibitor Cu termasuk asam lunak (*Hard and Soft Acid Bases* dari Pearson, 1963) [2]. Akibatnya situs asam dari rangka zeolit perlu diubah menjadi situs asam lunak melalui pembentukan H-zeolit untuk mempermudah proses substitusi oleh logam-logam inhibitor. Konsep zeolit sebagai *antiseptic carrier* berangkat dari sifat *cation reversible*, hal tersebut dapat dilihat dari zeolit yang dibentuk oleh kristal aluminium silikat, dengan kation gol. I dan II. Rumus empiris : $\text{M}_{2/n}\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot y \text{SiO}_2 \cdot w\text{H}_2\text{O}$. Dimana M sebagai

sumber kation yang dapat dipertukarkan (CEC). Kristal zeolit alam, biasa bercampur dengan mineral lain (al : montmorilonit, apatit, kuarsa) dan oksida bebas dari jenis Al, Si maupun Fe. Dengan adanya SiO₂ bebas maka dalam memurnikan zeolit alam perlu dilakukan proses pelarutan oksida tersebut dengan asam fluorida atau substitusi asam mineral lain pada konsentrasi tertentu yang bertujuan hanya melarutkan oksida-oksida pengotor termasuk silika, alumina bebas maupun besi oksida. Karakter fluorida perlu diperhitungkan agar tidak merusak kristal yang dibentuk oleh senyawa silikat. Struktur tetrahedral zeolit di alam di Indonesia, biasanya diikuti oleh kation-kation penetral dari jenis K, Na, Ca, Ba dan Mg. Kation penetral, bukan merupakan bagian kerangka zeolit dan terdistribusi di dalam saluran rongga-rongga rangka. Kation tersebut bersifat mudah bergerak, tetapi tidak mudah meninggalkan kristal, karena untuk mempertahankan kenetralan kristal. Berdasarkan sifat tersebut, maka dipilih teknik *soaking impregnation (wet impregnation)* terhadap struktur H-zeolit oleh logam inhibitor Cu. Pemilihan inhibitor berdasarkan sifat oligodinamik yang spesifik dari logam tersebut terhadap mikroba patogen. Dengan memahami karakter, kondisi yang diperlukan untuk proses teknik impregnasi logam inhibitor pada struktur zeolit, maka tetrahedral akan berfungsi sebagai *antiseptic carrier*.

Penelitian terdahulu memperlihatkan, bahwa zeolit alam Indonesia didominasi oleh jenis mordenit dengan formula kimia $Ca,K_2,Na_2)Al_2Si_{12}O_{24} \cdot 7H_2O$, pada pemanasan suhu yang tinggi (>800°C), akan mengakibatkan zeolit *collaps* dan kristal akan berubah menjadi bentuk *amorf*, pada kondisi demikian fungsi alamiah dari kristal menjadi hilang (Lenny M.Estiaty, Yoshiaki Gotto, Dewi Fatimah et.al, 2002) [3]. Sedangkan untuk jenis klinoptilolit tidak boleh lebih dari 500°C. Sehingga temperatur kalsinasi perlu dikontrol dengan baik agar sifat zeolit sebagai *antiseptic carrier* dapat dicapai.

Penanaman/pemasukan logam pada struktur zeolit dapat menyebabkan perubahan beberapa sifat zeolit seperti stabilitas terhadap panas, lebih tahan terhadap perubahan pH, maupun sifat adsorpsinya, sehingga akan memperbaiki sifat zeolit alam. Dengan didapatkannya metode optimum pembuatan material antiseptik berbasis zeolit alam dengan logam inhibitor tersebut diharapkan membuka peluang baru dalam pemanfaatan mineral silikat alam khususnya

zeolit sebagai *antiseptic carrier*, sehingga akan menaikkan nilai ekonomi dari zeolit (golongan C), serta akan mengurangi ketergantungan impor bahan baku industri farmasi maupun industri kosmetika.

METODA PENELITIAN

Penelitian terbagi dalam 3 (tiga) bagian, secara garis besar terbagi dalam bagian yang saling terkait, yaitu: Preparasi sampel zeolit, proses impregnasi dan uji produk terhadap mikroba patogen.

1) Preparasi sampel zeolit yang sesuai

Zeolit yang diambil dari alam diseleksi melalui pembersihan dari pengotor non-zeolit seperti tanah, ranting ataupun pelapuk organik melalui pencucian dengan air. Kemudian dilakukan pengeringan pada suhu sekitar 105°C, selanjutnya dilakukan proses pengecilan ukuran, ukuran yang dipilih adalah -8 +16 mesh.

2) Proses impregnasi, melalui proses aktivasi dan modifikasi

Sebelum dilakukan proses impregnasi, zeolit akan diaktivasi melalui perendaman dengan asam fluorida 0.1 N, dilanjutkan dengan HCl pada variasi konsentrasi 0.5N -2N. Dilakukan pula pencucian dengan aquades untuk menghilangkan kelebihan asam, kemudian dilakukan kalsinasi pada suhu 200°C-300°C. Selanjutnya dilakukan modifikasi dengan cara pengubahan zeolit menjadi bentuk ammonium. Kemudian dilakukan modifikasi dengan asam khlorida untuk menjadikan zeolit-H. Setelah itu dilakukan proses impregnasi, metode yang digunakan teknik *soaking impregnation (wet impregnation)* dengan inhibitor Cu. Proses-proses tersebut diatas dilakukan dengan metoda aliran kontinyu.

3) Uji produk terhadap mikroba patogen spesies *E-Coli* dan *C.Albicans* dengan analisis mikrobiologi antara lain mencari daya hambat pertumbuhan dan daya serap.

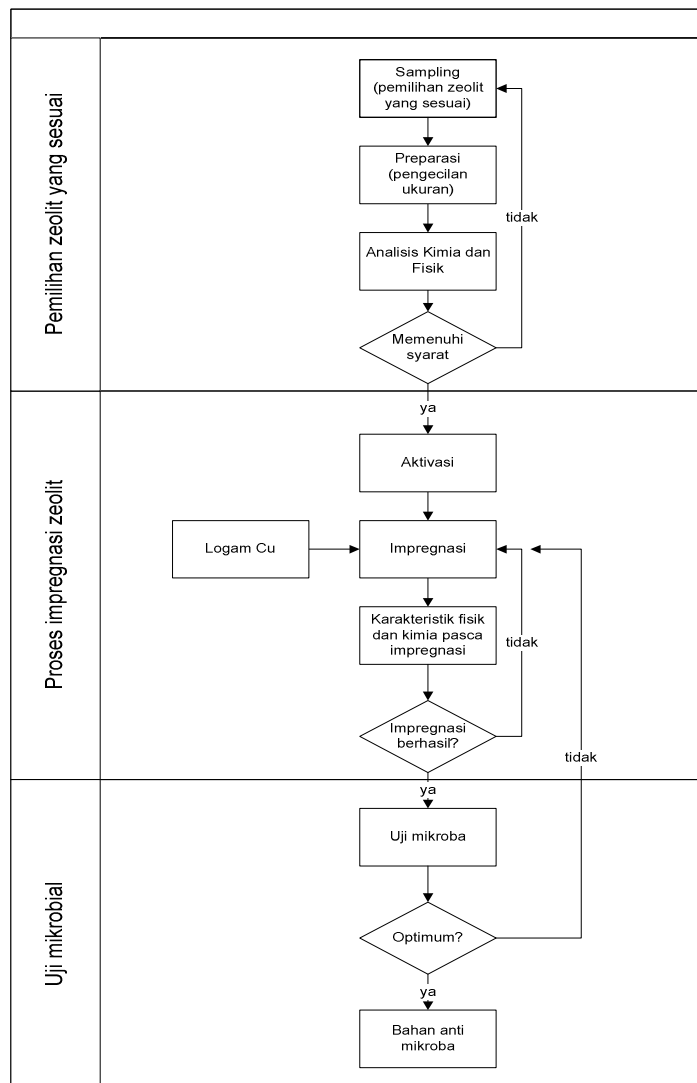
Secara garis besar, tahapan penelitian yang akan dilakukan digambarkan dalam diagram alir dibawah ini.

HASIL DAN DISKUSI

Analisis kimia dilakukan dengan menggunakan AAS (Atomic Absorption Spectrofotometer), yang tertera hasilnya pada tabel 1. Komposisi utama dari zeolit didominasi pertama oleh silikon dan kedua oleh

aluminium, sebagaimana rangka utama pembentuk zeolit. Berdasarkan hasil analisis diatas , kadar natrium cukup besar karena selain dari zeolit, natrium tersebut juga merupakan komponen dari mineral albite. Selain natrium dari hasil analisa kimia terdapat juga unsur kalium, kalsium dan magnesium, unsur-unsur tersebut selain sebagai pengotor juga yang tinggal di dalam kerangka zeolit sebagai penetral muatan. Kation tersebut bergerak bebas dan dapat dipertukarkan. Pengotor lainnya adalah besi. Pemurnian zeolit dengan asam, dalam hal ini HF dan HCl bertujuan untuk melarutkan

unsur-unsur pengotor yang ada pada zeolit sehingga permukaan pori-pori zeolit menjadi bersih. Proses pemurnian ini akan melarutkan silikat, aluminium, titanium dan senyawa besi, senyawa-senyawa tersebut berasal dari pengotor-pengotor oksida atau dari mineral lain dalam hal ini albite seperti yang tertera pada gambar 1 yang berada bersama zeolit. dan beberapa logam seperti Na^+ , K^+ , Mg^{2+} dan Ca^{2+} yang berada pada rongga zeolit dan menutupi sebagian rongga pori dan menggantikannya dengan H^+ dalam ruang intramellar, sehingga menjadikan zeolit lebih poros dan permukaannya lebih aktif.



Gambar 1. Diagram alir proses impregnasi zeolit alam dengan Cu

Tabel 1. Komposisi Kimia Zeolit Raw, Hasil Pemurnian dan % Penurunan Unsur Setelah Pemurnian

No.	Unsur (%)	Zeolit Raw	Zeolit Hasil Pemurnian	% Penurunan Unsur Setelah Pemurnian
1.	SiO ₂	68.49	68.29	0.29
2.	TiO ₂	0.44	0.42	4.55
3.	Al ₂ O ₃	12.10	11.96	1.16
4.	Fe ₂ O ₃	0.78	0.77	1.28
5.	MnO	0.0005	0.0005	0
6.	MgO	0.10	0.11	-
7.	CaO	0.12	0.11	8.33
8.	K ₂ O	1.24	1.54	-
9.	Na ₂ O	1.50	1.50	0
10.	P ₂ O ₅	0.52	0.59	-
13.	LOI	14.31	14.89	

Pada tabel 1 terlihat hasilnya bahwa pada hasil pemurnian terjadi pengurangan kadar silikat dan alumunium ,diharapkan bukan dari kerangka zeolit, tetapi dari pengotor (mineral ikutan). Agar hal ini tidak terjadi konsentrasi fluorida perlu diperhatikan agar tidak merusak struktur kristal yang dibentuk oleh senyawa silikat.

Salah satu indikator yang umum dipakai untuk mengetahui mutu zeolit hasil pemurnian adalah dengan mengukur nilai KTK nya, apakah ada peningkatan. Kapasitas tukar kation dari zeolit Cikanra, Tasikmalaya sebelum pemurnian (tabel 2) adalah 126.26 mek/100gr. Ini adalah jumlah kation yang dapat dipertukarkan oleh zeolit tanpa diaktifasi. Dari tabel 2 terlihat pula bahwa KTK dari zeolit hasil pemurnian adalah 140.17 mek/100gr, artinya pemurnian zeolit alam dapat meningkatkan daya tukar kation. Hal ini terjadi karena pemurnian telah membersihkan rongga pori, rongga pori terbuka kemudian luas permukaan menjadi bertambah yang menyebabkan proses tukar kation menjadi maksimal. Dalam keadaan normal ruang hampa dalam kristal zeolit terisi oleh molekul air bebas yang berada disekitar kation. Bila zeolit dipanaskan pada suhu

sekitar 300°C maka air tersebut akan keluar yang menyebabkan medan listrik meluas ke dalam rongga utama dan akan efektif terinteraksi dengan molekul yang akan diadsorpsi. Sehingga daya serap dan daya tukar kation akan meningkat.

Situs dari rangka zeolit perlu diubah menjadi situs yang mudah disubstitusi oleh logam yaitu menjadi zeolit-H. Proses untuk pembuatan zeolit-H, adalah melalui proses tukar kation pada zeolit hasil pemurnian dengan larutan amonium acetat dengan reaksi : $Zeo-M_{(s)} + NH_4OAc_{(l)} \rightarrow Zeo-NH_4_{(s)} + MOAc_{(l)}$, tukar kation menggunakan larutan amonium acetat 1 N. Zeolit-NH4 yang didapat diproses kembali dengan larutan HCl 0.3 N, sehingga terjadi pertukaran ion NH₄⁺ dengan H⁺ dengan reaksi: $Zeo-NH_4_{(i)} + HCl_{(i)} \rightarrow Zeo-H_{(s)} + NH_4Cl_{(l)}$.

Dari Tabel 3, terlihat bahwa adanya penurunan kadar Na, K, Ca, Mg pada zeolit-H bila dibandingkan dengan kadar Na, K, Ca, Mg dari zeolit hasil pemurnian. Proses tukar kation terjadi pada rongga zeolit, sebagai indikator adalah turunnya kation-kation yang berada pada rongga zeolit dan tidak terjadi degradasi pada rangka zeolit yang ditandakan tidak ada penurunan kadar Si dan Al.

Tabel 2. Kapasitas Tukar Kation dari Zeolit Alam Zeolit Hasil Pemurnian

Zeolit Alam (mek/100gr)	Zeolit Hasil Pemurnian (mek/100gr)
126.26	140.17

Tabel 3. Hasil Analisa Kimia Zeolit Raw, Zeolit Hasil Pemurnian dan Zeolit-H dan % Penurunan Unsur Setelah Pada Zeolit-H

No.	Unsur (%)	Zeolit Raw	Zeolit Hasil Pemurnian	Zeolit -H	Penurunan Unsur Pada Zeolit-H
1.	SiO ₂	68.49	68.29	68.52	
2.	TiO ₂	0.44	0.42	0.37	
3.	Al ₂ O ₃	12.10	11.96	12.06	
4.	Fe ₂ O ₃	0.78	0.77	0.83	
5.	MnO	0.0005	0.0005	0.0003	
6.	MgO	0.10	0.11	0.07	36.36
7.	CaO	0.12	0.11	0.016	85.45
8.	K ₂ O	1.24	1.54	0.32	79.22
9.	Na ₂ O	1.50	1.50	0.042	97.2
10.	P ₂ O ₅	0.52	0.59	0.52	
13.	LOI	14.31	14.89	16.74	

Ini berarti konsentrasi HCl yang dipakai menukar kation NH₄⁺ sudah cukup. Pada tabel 3, tertera persentase penurunan kadar Na, K, Ca, Mg. Pada zeolit-H walaupun penurunan kadar Na, K, Ca, Mg cukup besar tapi penurunan kadar-kadar tersebut belum mencapai 100%, ini berarti zeolit-H tersebut belum sempurna. Walaupun demikian situs dari zeolit sudah berubah ke arah situs asam, sehingga zeolit-H ini diharapkan sudah dapat disubstitusi oleh ion logam, untuk kebutuhan tertentu.

Setelah mendapatkan zeolit-H proses impregnasi dimulai dengan mengelusi zeolit

oleh larutan Cu(NO₃)₂. Pada tabel 5 tertera hasil analisa konsentrasi larutan Cu yang dielusikan, konsentrasi larutan Cu sisa dan larutan Cu yang diserap. Cu yang terserap oleh zeolit-H sebanyak 631,2 ppm. Zeolit-Cu yang terbentuk dianalisis kimia untuk mengetahui komposisi kimianya dan dibandingkan dengan komposisi kimia dari zeolit-H dan zeolit asal (raw). Disini terlihat bahwa logam Cu telah tertanam sebanyak 0.41 %. Impregnasi logam Cu telah berhasil dilakukan walaupun belum sempurna, hal ini didukung dengan data EDX dari zeolit alam dan zeolit-Cu.

Tabel 4. Hasil Analisa Kimia Zeolit Alam, Zeolit Hasil Pemurnian dan Zeolit Hasil Impregnasi

No.	Unsur (%)	Zeolit Raw	Zeolit Hasil Pemurnian	Zeolit Hasil Impregnasi Cu
1.	SiO ₂	68.49	68.29	68.52
2.	TiO ₂	0.44	0.42	0.37
3.	Al ₂ O ₃	12.10	11.96	12.06
4.	Fe ₂ O ₃	0.78	0.77	0.83
5.	MnO	0.0005	0.0005	0.0003
6.	MgO	0.10	0.11	0.07
7.	CaO	0.12	0.11	0.016
8.	K ₂ O	1.24	1.54	0.32
9.	Na ₂ O	1.50	1.50	0.042
10.	P ₂ O ₅	0.52	0.59	0.52
11.	H ₂ O ⁻	1.69	1.56	1.85
12.	H ₂ O ⁺	3.72	3.89	6.84
13.	LOI	14.31	14.89	16.74
14.	Cu	0.003	0.008	0.41

Tabel 5. Hasil Analisa Larutan Cu

Proses	Filtrat Awal (ppm)	Filtrat Akhir (ppm)	Cu yang Terserap (ppm)
Impregnasi Cu	1622.9	991.7	631.2

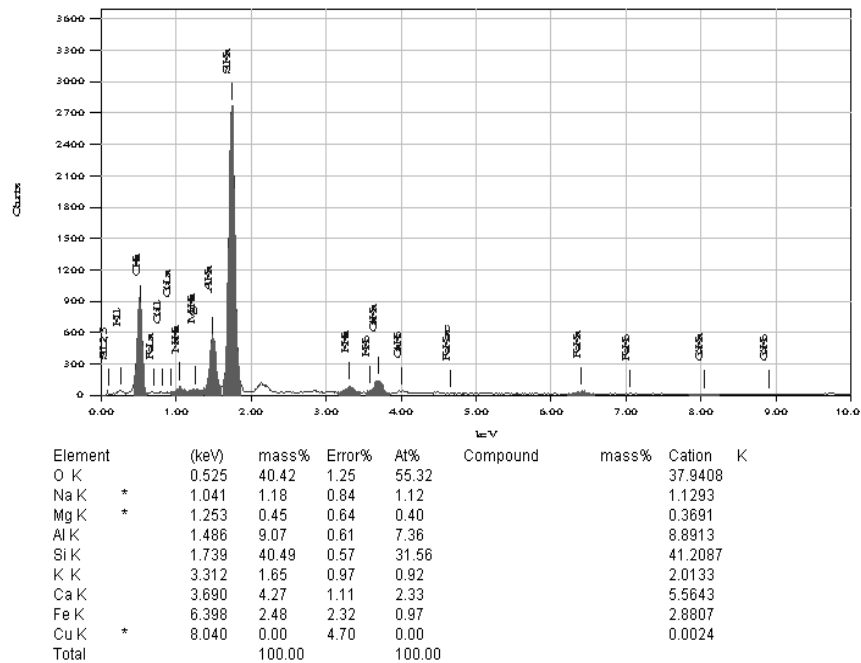
Pada gambar 1 hasil analisa EDX untuk zeolit alam logam Cu tidak terdeteksi, setelah proses impregnasi hasil EDX dari zeolit-Cu tertera kadar logam Cu sebanyak 1.51%, ini menunjukkan bahwa proses impregnasi logam Cu tercapai.

Setelah perlakuan pemurnian, modifikasi dan impregnasi, perlu dilihat apakah ada kerusakan pada kristal zeolit. Hal ini dapat dilihat dengan SEM yang tertera pada gambar 3 dan 4. Gambar 3, adalah gambar bentuk kristal zeolit alam (sebelum diproses), disini terlihat kristal mordenit berbentuk kristal jarum. Gambar 4, adalah gambar zeolit setelah mengalami proses pemurnian, modifikasi dan impregnasi logam Cu. Pada gambar 4 masih terlihat bentuk kristal jarum dari mordenit. Ini artinya bahwa proses-proses yang telah dilakukan tidak merubah bentuk kristal zeolit, sehingga diharapkan sifat alamiah dari zeolit tidak berubah.

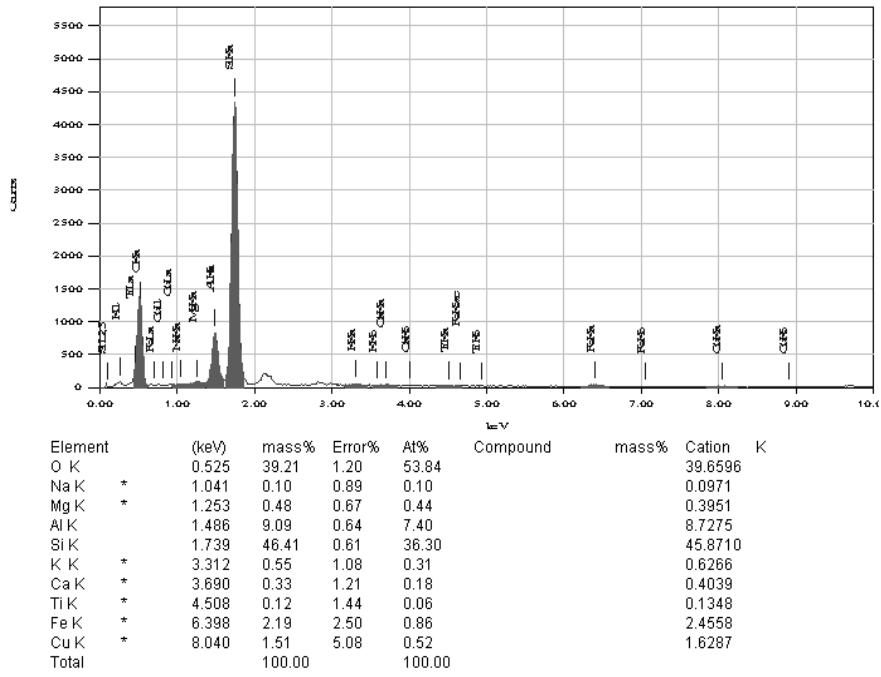
Pada gambar 5 dan 6 tertera diffraktogram XRD dari zeolit alam dan zeolit -Cu, disini

terlihat tidak terjadi degradasi pada puncak-puncak mordenit, sehingga diharapkan sifat alamiah dari zeolit tidak berubah.

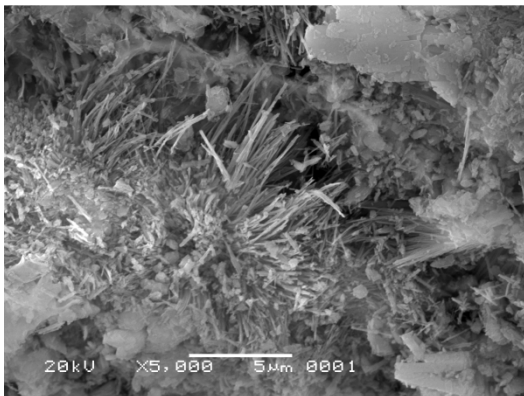
Zeolit-Cu yang dihasilkan diuji daya hambatnya terhadap pertumbuhan bakteri maupun jamur hasilnya dibandingkan dengan zeolit alam. Pada tabel 7, terlihat bahwa pertumbuhan jamur *Candida albicans* terlihat lebih besar pada media yang didalamnya terdapat zeolit alam bila dibandingkan dengan media yang didalamnya terdapat zeolit-Cu. Selain itu pada tabel 8, terlihat bahwa pertumbuhan *Escherichia coli* terlihat lebih besar pada media yang didalamnya terdapat zeolit alam bila dibandingkan dengan media yang didalamnya terdapat zeolit-Cu, hal ini sesuai dengan yang diharapkan bahwa zeolit-Cu dapat menghambat pertumbuhan baik jamur maupun bakteri. Semakin banyak konsentrasi zeolit-Cu yang diberikan, pertumbuhan bakteri maupun jamur semakin terhambat.



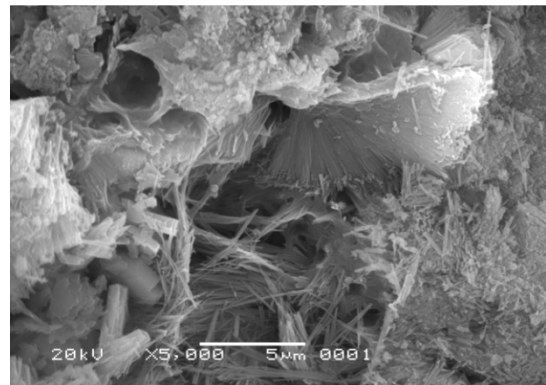
Gambar 1. Data EDX (Energy dispersive X-Ray Spectrometer) dari Zeolit Alam



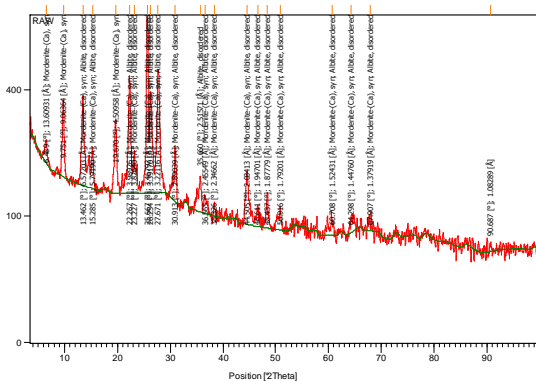
Gambar 2. Data EDX (Energy Dispersive X-Ray Spectrometer) dari Zeolit-Cu



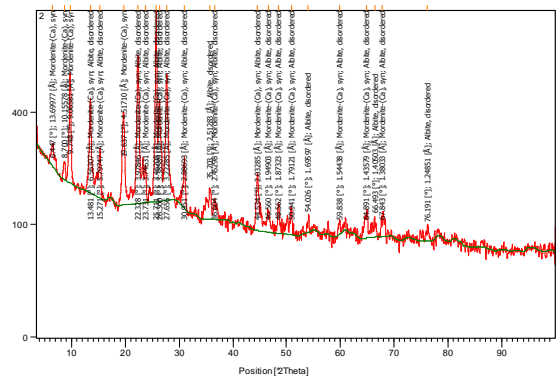
Gambar 3. SEM (5000 X) Zeolit Alam



Gambar 4. SEM (5000 X) Zeolit -Cu



Gambar 5. Diffraktogram XRD Zeolit



Gambar 6. Diffraktogram XRD Zeolit-Cu

Tabel 6. Hasil Uji Mineralogi Diffraksi Sinar X

No.	Jenis	Mineral Terperi	Kadar (%)
1.	Zeolit alam	Mordenit	57.6
		Albite	42.4
2.	Zeolit-Cu	Mordenit	62.7
		Albite	37.3

Tabel 7. Pertumbuhan Jamur *Candida Albicans*

Sampel	Pertumbuhan <i>C. albicans</i> pada berbagai konsentrasi sampel		
	10%	20%	30%
Zeolit- Cu	104 x 10 ⁷	50 x 10 ⁷	33 x 10 ⁷
Zeolit Alam	110 x 10 ⁷	75 x 10 ⁷	53 x 10 ⁷

Tabel 8. Pertumbuhan Jamur *Escherichia coli*

Sampel	Pertumbuhan <i>E. coli</i> pada berbagai konsentrasi sampel		
	10%	20%	30%
Zeolit-Cu	111 x 10 ⁷	60 x 10 ⁷	37 x 10 ⁷
Zeolit Alam	122 x 10 ⁷	100 x 10 ⁷	70 x 10 ⁷

KESIMPULAN

Pemurnian zeolit alam dapat melarutkan silikat, alumunium, titanium dan senyawa besi, senyawa-senyawa tersebut berasal dari pengotor-pengotor oksida yang berada bersama zeolit.dan beberapa logam seperti K⁺, Mg²⁺ dan Ca²⁺ yang berada pada rongga zeolit dan menutupi sebagian rongga pori dan menggantikannya dengan H⁺dalam ruang intramellar, sehingga menjadikan zeolit lebih porous dan permukaannya lebih aktif. Sehingga daya serap dan daya tukar kation akan meningkat.

Modifikasi zeolit alam menjadi zeolit-H dapat dilakukan melalui pemurnian zeolit alam dan dilanjutkan dengan proses tukar kation dengan larutan amonium acetat. Proses tukar kation terjadi pada rongga zeolit, sebagai indikator adalah turunnya kation-kation yang berada pada rongga zeolit dan tidak terjadi degradasi pada rangka zeolit yang ditandakan tidak ada penurunan kadar Si dan Al.

Impregnasi logam Cu terjadi, semakin banyak logam K, Na, Ca, Mg yang keluar, pembuatan zeolit-H semakin sempurna sehingga penanaman logam Cu menjadi maksimal Proses pemurnian, modifikasi dan impregnasi tidak merubah bentuk kristal zeolit. Dan tidak

terjadi degradasi pada puncak-puncak mordenit, sehingga diharapkan sifat alamiah dari zeolit tidak berubah. Sehingga mampu berfungsi sebagai *antiseptic carrier*.

Zeolit-Cu yang dihasilkan diuji daya hambatnya terhadap pertumbuhan bakteri maupun jamur hasilnya terlihat bahwa pertumbuhan jamur *Candida albicans* lebih besar pada media yang didalamnya terdapat zeolit alam bila dibandingkan dengan media yang didalamnya terdapat zeolit-Cu. Selain itu terlihat bahwa pertumbuhan *Escherichia coli* lebih besar pada media yang didalamnya terdapat zeolit alam bila dibandingkan dengan media yang didalamnya terdapat zeolit-Cu, hal ini sesuai dengan yang diharapkan bahwa zeolit-Cu dapat menghambat pertumbuhan baik jamur maupun bakteri. Semakin banyak konsentrasi zeolit-Cu yang diberikan, pertumbuhan bakteri maupun jamur semakin terhambat.

DAFTAR PUSTAKA

1. Dewi Fatimah, 2001, *Karakterisasi Sifat Fisiko-Kimia Mineral Zeolit Alam, Malang Jawa Timur*, Jurnal Nusantara Kimia (JNK) Vol.VIII, No.1, Januari 2001, ISSN 0854-6541.

2. Pearson, RG. 1963. *Hard and Soft Acids dan Bases*. J. Am. Soc. 85: 3533-3539
3. Lenny M. Estiaty, Yoshiaki Gotto, Dewi Fatimah et.al., *Zeolite From Cikancra Tasikmalaya, West Java: A Review of Its Properties*, Seminar Iptek Nuklir dan Pengelolaan Sumberdaya Tambang, Pusat Pengembangan Bahan Galian dan Geologi Nuklir, BATAN, Jakarta 2 Mei 2002 ISBN 979-8769-11-2.
4. Amun Amri, Supranto, M. Fahrurrozi. 2004. *Keseimbangan Adsorpsi Optional Campuran Biner Cd (II) dan Cr(III) dengan Zeolit Alam Terimpregnasi 2-merkaptobenzotiazol*, Jurnal Natur Indonesia 6(2): 111-117 (2004) ISSN 1410-9379
5. Bowen Li, Shuhui Yu, Jim Y Hwang, Shangzhao Shi. 2002. *Antibacterial Vermiculite Nano -Material* Michigan Technological University, Houghton, 49931, USA Journal of Minerals and Materials Characterization & Engineering vol.1 No.1 pp.61-68, 2002. printed in the USA All Rights Reserve.
6. Dietrich H. Nies., *Microbial heavy metal resistance: Molecular biology and utilisation for biotechnological processes*, Institut für Mikrobiologie, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
7. Dewi Fatimah, *Zeolit Cikalong, Tasikmalaya, Jawa barat, menurunkan Konsentrasi Mangan dan Besi di dalam Air tanah*, Berita Puslitbang Geoteknologi – LIPI, No. 1, Tahun X IV, Januari 2001. ISSN 0215-2725
Surdia T. dan Saito S. 1995. *Pengetahuan Bahan Teknik*, Cetakan ke-3, PT Pradnya Paramita, Jakarta
8. D. Setyawan P. Handoko () *The Effect of Acid, Hydrothermal and Support Chromium treatments of Natural Zeolite in Catalyst Preparation*, Staf Pengajar Jurusan Kimia FMIPA Universitas Jember.
9. E. Erdem, N. Karapinar, R. Donat. 2004. *The Removal of Heavy metal cations by natural zeolites*, Journal of Colloid and Interface Science 280, 309-314, Department of Chemistry, Faculty of Science and Arts, Pamukkale University, 20017 Denizli, Turkey
10. <http://www2.dwworld.de/indonesia/wissenschaft/1.44371.1.html> *Perak Sebagai Unsur Anti Infeksi*.
11. Mursi Sutarti dkk. 1994. *Zeolit*, Tinjauan Literatur, Pusat Dokumentasi dan Informasi, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia
12. R.M. Barrer, FRS. 1978. *Zeolites and Clays Minerals as sorbents and Molecular Sieves*, Academic Press.
13. Probisher, M. et.al. 1974. *Fundamentals of Microbiology*. Toppan Co. Ltd, Tokyo.
14. Roocyta H. et.al. 2005. *Sintesa Zeolit Katalis Berbahan baku Mordenit*, Laporan Penelitian Program Penelitian dan Pengembangan IPTEK, Puslit Geoteknologi-LIPI, 2005
15. Suryatono; et.al. 1990. *Penggunaan Zeolit Bayah sebagai penukar kation logam-logam Berat pada pengolahan air buangan proses elektroplating* di DKI Jakarta, Bandung; Pusat Pengembangan Teknologi Mineral.
16. Tarasevich, Y.I. et.al. 1985. *Dalam Geology, Physicochemical Properties and Utilisation of Natural Zeolit*, Metsnicreba, Tbilisi.
17. Tsitsishvili, G.V, et.al. *Natural Zeolit* England: Ellis Horwood Limited, 1992.
18. Kristi L. Farrington, RRT, BCS, CCRC, and Lee E. Morrow, MD. 2005. *Antimicrobial Metals (Silver and copper) A Nonantibiotic Approach to Nosocomial Infections*, The Journal for Respiratory, October.
19. <http://www.castingimpregnation.net/Page s/Impregnation>.

KINETIKA DAN DIFUSI PENUKARAN ION Cs KE DALAM ZEOLIT BAYAH, LAMPUNG DAN TASIKMALAYA

Dian Anggraini, Noviarty, Arif Nugroho

Bidang Pengembangan Radio Metalurgi-Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir
Badan Tenaga Nuklir Nasional
Kawasan PUSPITEK Gedung No. 20, Serpong 15314
Telp. (021)7560915, Fax: (021)7560909
Emails: ad_09@ymail.com

ABSTRAK

Penukaran ion Cs ke dalam NH₄-Zeolit yang telah diaktifasi menjadi monokation zeolit telah dilakukan terhadap zeolit alam yang berasal dari daerah Bayah, Lampung dan Tasikmalaya. Terhadap ketiga jenis zeolit tersebut, proses penukaran ion Cs dengan ion ammonium dilakukan pada berbagai variasi waktu (dari 1 jam sampai dengan 24 jam) dan suhu (303 K dan 323 K). Kinetika penukaran kation dan proses difusi pada masing-masing jenis zeolit diamati dan dihitung besaran parameternya meliputi koefisien difusi dan energi aktivasi menggunakan rumusan persamaan Arrhenius. Hasil pengamatan menunjukkan bahwa koefisien difusi dari ion Cs ke dalam zeolite Bayah, Lampung dan Tasikmalaya hampir sama yaitu masing-masing sebesar $2,3 \cdot 10^{-13}$, $2,3 \cdot 10^{-13}$ dan $2,1 \cdot 10^{-13}$ m².det.⁻¹ pada suhu 303 K, serta $9,3 \cdot 10^{-14}$, $9,6 \cdot 10^{-14}$, dan $9,6 \cdot 10^{-14}$ m².det.⁻¹ pada suhu 323 K. Sedangkan hasil perhitungan parameter kinetika reaksi penukaran ion berupa energi aktivasi, E_a (kJ/mol) ke dalam ketiga jenis zeolit tersebut juga hampir sama nilainya yaitu sebesar 36.61, 36.61, dan 31.09 untuk masing-masing zeolit Bayah, Lampung dan Tasikmalaya. Hasil dari penelitian ini menunjukkan nilai E_a lebih besar daripada hasil penelitian terdahulu yang menggunakan zeolit buatan (zeolit-A dengan E_a = 9,96 kJ/mol), sehingga dapat disimpulkan bahwa penukaran ion Cs ke dalam zeolit alam mempunyai hambatan yang lebih besar karena kandungan komposisi zeolit alam lebih kompleks yang dimungkinkan dapat mengandung lebih dari satu jenis struktur zeolite.

Kata Kunci : Kinetika Penukar Kation, Difusi, Ion Cs, Zeolit Alam

ABSTRACT

THE KINETIC AND DIFFUSION ION EXCHANGE OF Cs ON ZEOLITE BAYAH, LAMPUNG, AND TASIKMALAYA. The ion exchange of Cs on NH₄-Zeolite which has been activated become a zeolite monocation has been conducted on natural zeolite from Bayah, Lampung, and Tasikmalaya. On these three types of zeolite, the process of ion exchange of Cs with ammonium ion was conducted at various time (from 1 hour up to 24 hours) and temperature (303 K and 323 K). Cation exchange kinetics and diffusion process on each type of zeolite was observed and calculated the parameters included diffusion coefficient and activation energy using Arrhenius formula. The study showed that diffusion coefficient from Cs-ions into zeolite of Bayah, Lampung, and Tasikmalaya almost same, which is about $2,3 \cdot 10^{-13}$, $2,3 \cdot 10^{-13}$ and $2,1 \cdot 10^{-13}$ m².det.⁻¹ at temperature 303 K, and $9,3 \cdot 10^{-14}$, $9,6 \cdot 10^{-14}$, and $9,6 \cdot 10^{-14}$ m².det.⁻¹ at temperature 323 K. The parameter calculation result of ion exchange reaction is activation energy E_a (kJ/mol) on that types of zeolite are almost same value, which is 36.61, 36.61, and 31.09 for each zeolite of Bayah, Lampung, and Tasikmalaya. The study showed that E_a value was greater than the previous study by using artificial zeolite (zeolit-A with E_a = 9,96 kJ/mol), so it can be concluded that Cs-ions exchange into natural zeolite has a greater barrier because the composition of natural zeolite more complex which was might contain more than one types of zeolite structure.

Keywords: cation Exchange Kinetics, Diffusion, Cs-ions, Natural Zeolite

PENDAHULUAN

Zeolit alam adalah suatu senyawa alumina silikat yang mempunyai struktur rangka tiga dimensi dan mengandung pori-pori yang terisi molekul-molekul air dan kation-kation alkali atau alkali tanah. Kerangka dasar struktur zeolit terdiri dari unit tetrahedral AlO₂ dan SiO₂ yang saling berhubungan melalui

atom O, sehingga zeolit mempunyai rumus empiris $x/n M^{n+} [(AlO_2)_x(SiO_2)_y \cdot zH_2O]$. Komponen pertama Mⁿ⁺ adalah sumber kation yang dapat bergerak bebas dan dapat dipertukarkan secara sebagian atau sempurna oleh kation lain. Struktur zeolit yang berpori dengan molekul air didalamnya, melalui pemanasan akan menyebabkan molekul air mudah lepas sehingga

menjadikan zeolit spesifik sebagai adsorben, *molecular sieving*, penukar ion dan katalisator. Karakteristik yang unik ini menyebabkan zeolit banyak digunakan dalam berbagai bidang industri (Siti Amini dkk., 2003) [1].

Dalam pemanfaatan zeolit alam pada suatu proses penukaran dan penyerapan ion, terlebih dahulu perlu diketahui karakteristik zeolit yang akan digunakan untuk mengetahui efektivitas kemampuan proses penukaran ion maupun sorpsi. Hal ini karena jenis zeolit alam umumnya berbeda antara sumber/deposit yang satu dengan yang lain dalam jumlah kandungan mineral, porositas serta KTK (kemampuan Tukar Kation) (Chemistry wordpress.com, 2009) [2]. Salah satu karakteristik yang perlu diketahui sebagai data awal dalam penggunaan zeolit adalah parameter proses difusi serta kinetiknya yang merupakan mekanisme proses pada penukaran ion dan sorpsi ion dalam zeolit. Proses difusi ion dalam struktur kristal dapat mengontrol proses penukaran ion. Tingkat penukaran dari partikel- partikel zeolit yang diperkirakan berbentuk spherikal yang dinyatakan dalam koefisien difusi dapat ditentukan mengikuti persamaan sbb;

$$F_i/F_{\infty} = 6/r \sqrt{D_i \cdot t / \pi} \dots\dots\dots(1)$$

dengan :

- F_i = nilai fraksi ion yang dipertukarkan pada waktu t
- F_{∞} = nilai fraksi ion yang dipertukarka pada waktu 24 jam
- r = Jari- jari partikel zeolit
- D_i = Koefisien difusi yang berkaitan dengan proses difusi internal antar dua ion yang dipertkarkan $10^{-10} / m^2s^{-1}$
- t = Waktu kontak, detik
- π = 22/7

Nilai koefisien difusi D_i selanjutnya digunakan dalam penentuan parameter kinetik yaitu energi aktivasi, E_a , melalui penggunaan rumus Arrhenius sbb (Siti Amini, 1988) [3];

$$D_i = D_o \exp(-E_a / RT) \dots\dots\dots(2)$$

- dengan : D_i = Koefisien difusi , (mes-1)
- R = Konstanta Bolzman
- E_a = Energi aktivasi, Jole/ mole
- T = Suhu, K

Besaran E_a diperoleh dari nilai slope yang didapat dari persamaan linieritas antara koefisien difusi (E_a) dan suhu (T). Besaran E_a merupakan energi yang diperlukan untuk sorpsi ion ke dalam zeolit dan bila nilainya

rendah menunjukkan bahwa ion tersebut dapat dengan mudah masuk ke dalam kerangka zeolit karena proses penukaran ion dalam zeolit tidak terhalangi oleh *ion sieve effects* (Hassan, 2005) [4].

Dalam bidang nuklir telah dilakukan penelitian selektifan zeolit lampung terhadap penukaran isotop- isotop radionuklida yang terdapat dalam bahan bakar nuklir bekas dan menunjukkan bahwa selektifan ion $Cs > Ba = Sr > Ce$ (Abd El Raman, 2006) [5]. Dari hasil ini terlihat bahwa ion Cs lebih mudah terserap oleh zeolit lampung dibanding dengan ion lainnya. Oleh karena itu, pada penelitian ini akan dilakukan proses penukaran ion Cs ke dalam zeolit, yang difokuskan pada mekanisme proses untuk menentukan parameter proses difusi dan kinetik sebagai data masukkan dalam perhitungan selanjutnya. Dalam upaya meningkatkan pemanfaatan zeolit maka pada penelitian ini selain menggunakan zeolit lampung juga digunakan zeolit dari Bayah dan Tasik yang merupakan sumber zeolit yang cukup potensial di Indonesia. Dari hasil penelitian ini diharapkan dapat memberikan informasi awal dalam pertimbangan penggunaan zeolit alam yang efektif untuk penyerapan ion Cs.

METODOLOGI

Serbuk CsCl digunakan sebagai bahan sumber ion Cs dan bahan zeolit alam (Bayah, Lampung dan Tasik) sebagai bahan penukar kation atau penyerap ion Cs. Bahan pereaksi yang dipakai adalah larutan amonium Chlorida, asam perchlorat, alkohol. Alat yang digunakan untuk proses penukaran kation terdiri dai seperangkat alat gelas, *hot plate*.

Sebelum dikenakan proses penukaran kation, ketiga jenis bahan zeolit alam (Bayah, Lampung, Tasik) terlebih dahulu diaktivasi dengan cara mencampur sejumlah tertentu bahan zeolit tersebut dengan larutan NH_4Cl , diaduk dan dicuci sampai air cucuian bebas chlrorida. Kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu $100^{\circ}C$. Selanjutnya ke tiga bahan zeolit yang telah teraktivasi masing- masing ditimbang sebanyak 5 g dan dimasukkan ke dalam gelas beaker yang telah berisi larutan CsCl, yang dibuat dari 2 g serbuk CsCl dengan 100 mL aquades. Larutan suspensi ini kemudian di aduk pada suhu $30^{\circ}C$ menggunakan *hot plate* selama 5 jam. Setiap 1 jam proses dilakukan pengecekan keberadaan ion Cs dalam larutan supernatan

dengan cara memipet sekitar 2 ml dan dimasukkan ke dalam tabung reaksi. Selanjutnya larutan ini dikenakan proses pengendapan sebagai $CsClO_4$ menggunakan asam perchlorat sebanyak 2mL pada suhu $0^{\circ}C$. Parameter kinetika yaitu koefisien difusi dan energi aktivasi dihitung melalui penggunaan persamaan 1 dan 2.

sorpsi ion Cs ke dalam zeolit tertuang pada Tabel.1 dan Gambar.1. dan Gambar.2

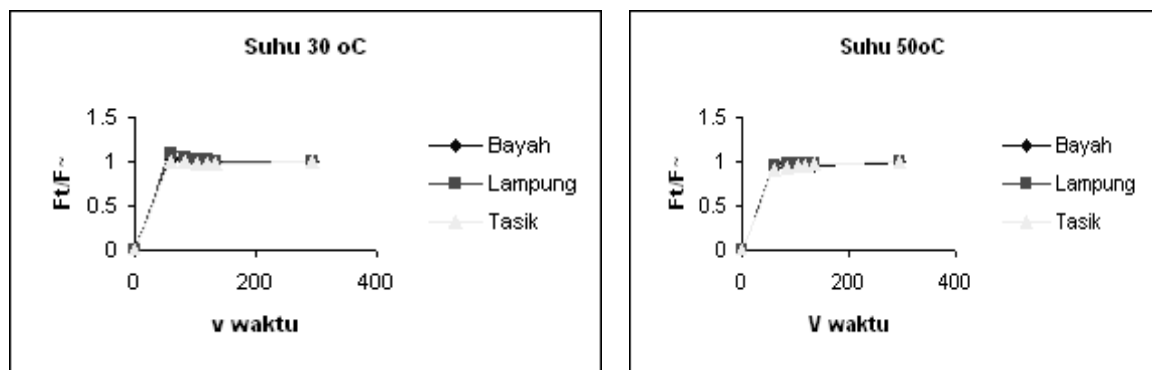
Dari Tabel.1 diatas terlihat bahwa proses penukaran ion Cs dalam zeolit Bayah, Lampung dan Tasik pada waktu kontak satu jam telah mencapai kesetimbangan terlihat pada nilai F_t/F_{∞} sekitar 1.00. Hal ini menunjukkan bahwa kemungkinan kecepatan proses difusi yang paling cepat terjadi sebelum waktu 1 jam. Nilai koefisien difusi diperoleh dari slope hubungan F_t/F_{∞} versus \sqrt{t} yang ditunjukkan pada Gambar 1. dan Gambar 2 untuk suhu $30^{\circ}C$ dan $50^{\circ}C$.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Nilai fraksi berat ion Cs (F_t/F_{∞}) dengan variasi waktu kontak dalam proses penukaran dan

Tabel 1. Data Fraksi Berat (F_t/F_{∞}) Ion Cs Variasi Waktu

Waktu (jam)	Ft/F~ pada suhu 30°C			Ft/F~ pada suhu 50°C		
	Bayah	Lampung	Tasikmalaya	Bayah	Lampung	Tasikmalaya
0	0	0	0	0	0	0
1	1.09	1.09	0.99	0.98	0.99	0.97
2	1.01	1.04	0.99	0.95	0.97	0.94
3	1.00	1.03	0.98	0.96	0.07	0.95
4	1.01	1.01	0.99	0.96	0.97	0.96
5	1.00	1.01	0.98	0.96	0.97	0.97
24	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00



Gambar 1. Hubungan F_t/F_{∞} dengan waktu (t) pada Suhu $30^{\circ}C$ Dan $50^{\circ}C$

Tabel 2. Koefisien Difusi (D_i) Pada suhu 303 dan 323 K

Suhu, K	$D_i, m^2 s^{-1}$		
	Bayah	Lampung	Tasik
303	2.30E-13	2.35E-13	2.06E-13
323	9.34E-14	9.62E-14	9.62E-14

Pada Gambar 1 terlihat bahwa zeolit Lampung mempunyai daya sorpsi lebih tinggi dibanding Bayah dan Tasik, namun perbedaan itu tidak begitu besar. Koefisien difusi (D_i) ditentukan berdasarkan nilai slope dari hubungan antara F_t/F_{∞} dan \sqrt{t} dan diperoleh untuk ke tiga jenis zeolit pada suhu

$30^{\circ}C$ adalah $50^{\circ}C$ seperti yang tercantum pada Tabel.2.

Nilai koefisien difusi dari ke tiga jenis zeolit alam terlihat hampir sama, hal ini kemungkinan komposisi ke tiga jenis zeolit tersebut hampir sama. Nilai E_a , ditentukan

menggunakan persamaan (2) yaitu melalui perhitungan slope dari hubungan $\ln D_i$ dengan $1/T$, dan diperoleh masing-masing sebesar 36,61, 36,61 dan 31,09 kJ/mol untuk zeolit Bayah, Lampung dan Tasik. Nilai E_a tersebut lebih besar bila dibanding dengan zeolit buatan (zeolit A) dengan nilai E_a sebesar 9,06 kJ/mol (Abd El Raman, 2006). Hal ini karena zeolit alam memiliki komposisi yang kompleks dan dimungkinkan mengandung lebih dari satu jenis struktur kristal.

KESIMPULAN

Hasil pengamatan dan pengukuran besaran koefisien difusi dari ion Cs ke dalam zeolite Bayah, Lampung dan Tasikmalaya diperoleh hampir sama masing-masing sebesar $2,3 \cdot 10^{-13}$, $2,3 \cdot 10^{-13}$ dan $2,1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{det}^{-1}$ pada suhu 303 K, serta $9,3 \cdot 10^{-14}$, $9,6 \cdot 10^{-14}$, dan $9,6 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{det}^{-1}$ pada suhu 323 K. Dan hasil perhitungan parameter kinetika reaksi penukaran ion berupa energi aktivasi, E_a (kJ/mol) ke dalam ketiga jenis zeolit tersebut juga hampir sama nilainya yaitu sebesar 36,61, 36,61, dan 31,09 untuk masing-masing zeolit Bayah, Lampung dan Tasikmalaya. Nilai E_a ini lebih besar dari nilai E_a bila menggunakan zeolit buatan (zeolit-A dengan $E_a = 9,96 \text{ kJ/mol}$), sehingga dapat

disimpulkan bahwa penukaran ion Cs ke dalam zeolit alam mempunyai hambatan yang lebih besar disebabkan kandungan komposisi zeolit alam lebih kompleks yang dimungkinkan dapat mengandung lebih dari satu jenis struktur zeolit.

DAFTAR PUSTAKA

1. Siti Amini dkk. 2003. "Kelektifan Zeolit Lampung Terhadap Kation- Kation Matrik Hasil Fisi Uranium", Jurnal Zeolit Indonesia, Vol.2. No.1 November 2003.
2. [http:// Chemistry wordpress.com 2009/04/18/zeolit](http://Chemistry.wordpress.com/2009/04/18/zeolit)
3. Siti Amini. November 1988. "A Study Of The Kinetics Of Ion Exchange Of Diffusion Product Into Mordenit And Zeolite-L. Departement of Chemibtry and applid Chemistry, University of Salvord.
4. N.M.Hassan. 2005. "Adsorption Of Crsium From Spent Nuclear Fuel Basin Water. Journal Of Radioanalytical And Nuclear Chemistry". September 2005.
5. K.M. Abd El Raman. 2006. "Modelling The Sorption Kinetics Of Cesium And Strontium Ions On Zeolite A". Journal Of Nuclear And Radiochemistry Science. Vol.7, No.2, 2006

ANALISIS ISOTOP Cs DALAM PROSES PEMISAHAN Cs DENGAN ZEOLIT MENGGUNAKAN SPEKTROMETRI- γ

Arif Nugroho, Dian Anggraini, Noviarty

Bidang Pengembangan Radiometalurgi – Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir
Badan Tenaga Nuklir Nasional
Kawasan PUSPIPTEK Gedung No.20, Serpong 15314
Telp. +62 21 7560915, Fax. +62 21 7560909
Emails: arif52@yahoo.com

ABSTRAK

Analisis isotop Cs dilakukan dalam proses pemisahan isotop Cs-137 menggunakan zeolit Lampung. Analisis Cs berdasarkan pada metoda ASTM E320-79, yang dimodifikasi. Proses modifikasi meliputi pemisahan Cs melalui ekstraksi menggunakan TBP/OK dan melalui pengendapan langsung sebagai CsClO₄, yang selanjutnya diaplikasikan menggunakan zeolit. Pengukuran isotop Cs dilakukan dengan menggunakan spectrometer γ . Hasil analisis Cs-137 melalui pengendapan langsung dengan zeolit diperoleh 86,40% \pm 0,1%, sedangkan hasil analisis Cs-137 melalui modifikasi proses pemisahan secara ekstraksi yang dilanjutkan dengan penangkapan oleh zeolit diperoleh rekovery sebesar 28,05% \pm 5,28% dan yang melalui modifikasi proses pengendapan secara ASTM diperoleh rekovery sebesar 52,55% \pm 1,11%. Dari hasil uji analisis tersebut disimpulkan bahwa penggunaan zeolit secara langsung lebih baik dari pada melalui proses modifikasi.

Kata kunci : Analisis Cs-137, Spektrometri- γ , Zeolit Lampung, Cs-rekovery

ABSTRACT

ANALYSIS OF ISOTOPE Cs ON PROCESSING SEPARATION OF Cs AND ZEOLITE USING SPECTROMETRY- γ . The analysis of Cs-isotope was conducted on separation process of Cs-137 isotope using a Lampung zeolite. Analysis of Cs based on modification of ASTM E320-79 method. Modification process including a Cs separation by extraction using a TBP/OK and by direct sedimentation as CsClO₄, which was subsequently applied using a zeolite. Cs-isotope measurement was conducted using spectrometer γ . The result of Cs-137 analysis through the direct sedimentation with zeolite obtained about 86,40% \pm 0,1%, while the analysis of Cs-137 by extraction modification separated process which followed by catching zeolite obtained a recovery about 28,05% \pm 5,28%, and by modification precipitation process with ASM obtained a recovery about 52,55% \pm 1,11%.

Keywords: Analysis of Cs-137, Spectrometry- γ , Zeolite Lampung, Cs-recovery

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan mineral yang banyak terdapat di dalam batuan yang merupakan lapisan tanah sedimen terbentuk dari timbunan abu vulkano karena adanya letusan gunung berapi. Terbentuknya di alam sangat bergantung pada lingkungan, umur batuan dan kedalaman dari permukaan tanah, sehingga dapat terjadi zeolit dengan jenis yang berlainan dalam batuan yang sama. Zeolit mempunyai sifat yang sangat khas, apabila mengalami dehidrasi. Kristal zeolit akan membentuk rongga yang dapat saling berhubungan dan membentuk 1-3 arah sehingga akan terlihat seperti sangkar. Struktur kristal yang unik ini membuat zeolit

mempunyai kemampuan sebagai absorben. Karakteristik lainnya adalah dapat mempunyai kemampuan sebagai penukar ion secara selektif untuk cesium dan unsur radioaktif lainnya. Zeolit merupakan kristal aluminosilikat terhidrasi yang mengandung kation alkali atau alkali tanah dalam kerangka tiga dimensi. Kerangka dasar struktur zeolit terdiri dari unit tetrahedral AlO₂ dan SiO₂ yang saling berhubungan melalui atom O, sehingga zeolit mempunyai rumus empiris sebagai berikut $x/n M^{n+} [(AlO_2)_x (SiO_2)_y] \cdot zH_2O$. Komponen pertama M^{n+} adalah sumber kation yang dapat bergerak bebas dan dapat dipertukarkan secara sebagian atau secara sempurna oleh kation lain. Sehingga sangat

baik bila digunakan sebagai bahan penukar ion (T.Las, 1989) [1].

Pada setiap proses pengujian elemen bakar nuklir teriradiasi umumnya menghasilkan limbah radioaktif cair dalam jumlah cukup banyak. Kandungan utama dari limbah tersebut sebagian besar adalah unsur-unsur berat sisa uranium dan isotop- isotop hasil fisi diantaranya adalah isotop Cs-137, Cs-134, Sr-90, Ba-137 dan Ce-140. Isotop Cs-137 mempunyai umur paruh panjang dan berbahaya bagi makhluk hidup. Sehubungan dengan hal tersebut muncul beberapa metoda untuk mereduksi atau mengambil isotop Cs-137 diantaranya adalah proses pengendapan kimia, ekstraksi dan pertukaran ion (Sutarti dan Mursi, 1994) [2].

Proses pemisahan isotop Cs dari larutan radioaktif hasil fisi melalui proses penukaran ion telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya menggunakan zeolit murni seperti modernit yang mempunyai diameter rongga $3 \times 6 \text{ \AA}$, klinoptilolit sebesar $6 \times 7 \text{ \AA}$. Nilai kapasitas tukar kation modernit sebesar 2,29 meq/g dan klinoptilolit sebesar 2,54 meq/g, sehingga dalam ukuran zeolit tersebut dimungkinkan zeolit mampu mengakomodasi kation Cs yang mempunyai diameter $3,3 \text{ \AA}$. Hal tersebut ditunjukkan oleh peneliti sebelumnya bahwa zeolit murni tersebut dapat mengambil isotop Cs-137 sampai 94% (Holmes and Pecover, 1987) [3] yang menunjukkan bahwa zeolit murni cukup efektif untuk digunakan dalam larutan radioaktif.

Penggunaan zeolit murni membutuhkan biaya yang cukup banyak dan juga pengadaannya memakan waktu lama sehingga perlu dilakukan penggunaan bahan alternatif seperti zeolit alam yang tersedia cukup banyak di Indonesia. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan pemisahan isotop Cs menggunakan zeolit alam dari Lampung sebagai sumber zeolit yang cukup potensial. Pada penelitian ini akan dilakukan proses pengambilan isotop Cs-137 dari larutan standar radioaktif Cs-137 dengan tujuan untuk mempelajari keefektifan pengambilan isotop Cs-137 dengan zeolit alam dari Lampung. Larutan radioaktif yang dihasilkan dari proses pasca iradiasi banyak mengandung isotop-isotop lain yang memungkinkan mengganggu proses pemisahan isotop Cs-137 dengan zeolit, untuk itu dilakukan proses modifikasi metode ASTM E320-79 (Dian

Anggraini, *et al.*, 2001) [4]. Berdasarkan ASTM E320-79 proses pemisahan isotop melalui proses ekstraksi yang dilanjutkan dengan proses pengendapan menggunakan HClO_4 . Hasil dari proses ini kemudian diterapkan untuk mengetahui efektifitas kemampuan zeolit menyerap isotop Cs-137 sebagai modifikasi metode ASTM E320-79. Selain itu dilakukan pula proses pengendapan langsung tanpa melalui ekstraksi. Hal ini dilakukan berdasarkan hipotesa bahwa zeolit selektif terhadap isotop Cs-137.

TATA KERJA

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah larutan standar Cs-137, zeolit Lampung, larutan HClO_4 sebagai bahan pembentuk endapan CsClO_4 , Air bebas mineral sebagai bahan pencuci endapan dan pelarut, dan Aseton sebagai bahan penyerap air/pengering endapan CsClO_4 yang terbentuk, serta CsNO_3 sebagai *carrier*

Peralatan yang digunakan adalah spectrometer gamma dari EG dan G ORTEC dengan detector HPGE, labu takar, tabung ekstraksi dan tabung reaksi.

Langkah kerja yang pertama adalah sebanyak 50 μl larutan standar Cs-137 dimasukkan ke dalam labu takar 10 ml, ditambah dengan 200,3 mg CsNO_3 selanjutnya dilarutkan dengan aquadest sampai dengan 10 ml. Hasil larutan induk ini kemudian dibagi menjadi 4 bagian dan ditimbang yang nantinya akan dilakukan modifikasi proses pemisahan secara ekstraksi dan pengendapan secara duplo. Radioaktivitas γ dari isotop Cs mula-mula diukur menggunakan spectrometer γ . Langkah selanjutnya dilakukan sebagai berikut:

1. Proses pemisahan secara ekstraksi yang dilanjutkan dengan penangkapan oleh zeolit

Sejumlah $\pm 2,5 \text{ g}$ larutan induk Cs-137 dimasukkan kedalam tabung ekstraksi kemudian diekstraksi menggunakan TBP/OK sebanyak 2 ml selama 10 menit pada alat ekstraktor dengan kecepatan 1000 rpm. Dipisahkan fase organiknya, selanjutnya fase airnya diekstraksi kembali menggunakan TBP/OK sebanyak 2 ml dan diulangi lagi ekstraksi menggunakan TBP/OK sebanyak 1 ml. Fase air yang diperoleh kemudian ditambah HClO_4 sebanyak 2 ml dalam media air dingin (*ice bath*). Proses ini dilakukan selama 1 jam, selanjutnya endapan CsClO_4

yang terbentuk dipisahkan dari cairannya dan dicuci dengan aquadest dan acetone. Endapan CsClO_4 kering yang diperoleh dilarutkan dalam 5 ml aquadest sampai larut, ditambah 1 g zeolit lampung diaduk selama 1 jam kemudian dilakukan pengujian Cs yang telah terserap oleh zeolit. Dengan cara endapan zeolit-Cs-137 dipisahkan dari cairannya kemudian dikeringkan dan radioaktivitas γ dari isotop Cs diukur menggunakan spectrometer γ .

2. Proses pemisahan secara pengendapan yang dilanjutkan dengan penangkapan oleh zeolit

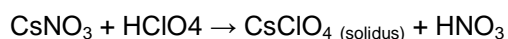
Sejumlah $\pm 2,5$ g larutan induk Cs-137 dimasukkan kedalam tabung reaksi, ditambah HClO_4 sebanyak 2 ml dalam media air dingin (*ice bath*). Proses ini dilakukan selama 1 jam, selanjutnya endapan CsClO_4 yang terbentuk dipisahkan dari cairannya dan dicuci dengan aquadest dan acetone. Endapan CsClO_4 kering yang diperoleh dilarutkan dalam 5 ml aquadest sampai larut, ditambah 1 g zeolit lampung diaduk selama 1 jam kemudian dilakukan pengujian Cs yang telah terserap oleh zeolit. Dengan cara endapan zeolit-Cs-137 dipisahkan dari cairannya kemudian dikeringkan dan radioaktivitas γ dari isotop Cs diukur menggunakan spectrometer γ .

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini hasil analisis Cs-137 melalui modifikasi proses pemisahan secara ekstraksi secara ASTM yang dilanjutkan dengan penangkapan oleh zeolit diperoleh rekovery sebesar $28,05\% \pm 5,28\%$ dan yang melalui modifikasi proses pengendapan diperoleh rekovery sebesar $52,55\% \pm 1,11\%$. Hasil tersebut lebih rendah dibandingkan dengan melalui pengendapan langsung menggunakan zeolit murni yaitu sebesar $86,40\% \pm 0,1\%$. Hal ini disebabkan karena pada proses pengendapan CsClO_4 melalui ekstraksi dan pengendapan langsung CsClO_4 ada sejumlah tertentu Cs yang hilang didalam proses ekstraksi dan proses pengendapan CsClO_4 . Ada beberapa proses yang dimungkinkan menyebabkan berkurangnya jumlah isotop Cs-137:

1. Proses ekstraksi, dimana jumlah isotop Cs-137 yang terambil dalam fase air berkurang karena ada sejumlah tertentu isotop Cs-137 yang terserap dalam fase organik sehingga menyebabkan efisiensi ekstraksi berkurang ($\leq 100\%$). Nilai efisiensi ekstraksi dapat dilihat pada Tabel 1.

2. Proses Pengendapan CsClO_4 , kemungkinan suhu proses pengendapan CsClO_4 dalam tabung reaksi kurang sempurna pada suhu 0°C , yang menyebabkan adanya CsClO_4 yang terlarut dalam larutan menyebabkan efisiensi proses pengendapan menjadi rendah. Nilai Efisiensi pengendapan CsClO_4 dapat dilihat pada Tabel 1 & 2. Persamaan reaksi yang terjadi adalah :



Endapan CsClO_4 memiliki daya larut pada temperatur 25°C sebesar 1,974 g/100 ml dan pada temperatur 0°C sebesar 0,8 g/100 ml. Hal ini menunjukkan bahwa pada temperatur 0°C jumlah CsClO_4 yang terlarut lebih rendah dari pada temperatur kamar sehingga dimungkinkan pada temperatur rendah proses pengendapan CsClO_4 akan lebih sempurna. Fenomena tersebut menjadikan dasar dalam metode ini yang menetapkan kondisi proses pengendapan dalam analisis isotop Cs-137 pada temperatur rendah (0°C atau dibawah titik beku air yaitu 4°C).

3. Proses penyerapan zeolit terhadap isotop Cs-137. Pada proses ini waktu kontak dan kecepatan pengadukan berpengaruh pada proses penyerapan zeolit. Terlihat pada Tabel 1 & 2 efisiensi penyerapan zeolit terhadap isotop Cs-137 antara 70% sampai dengan 91%, hal ini menunjukkan bahwa ada sebagian isotop Cs-137 yang belum sepenuhnya terikat dalam zeolit.

Pada penelitian ini nilai rekovery penyerapan isotop Cs-137 menggunakan zeolit alam Lampung lebih kecil dibandingkan dengan menggunakan zeolit murni (94%).

Tabel 1. Data efisiensi dan rekoveri modifikasi proses pemisahan secara ekstraksi

Uraian	Pengulangan		Rerata
	Pertama	Kedua	
Cacahan larutan awal Cs-137, cps	46,986	40,986	
Cacahan Cs-137 dalam fase air, cps	43,334	35,368	
Efisiensi proses ekstraksi, %	92,23%	86,29%	89,26% ± 4,20%
Cacahan Cs-137 dalam CsClO ₄ , cps	15,798	17,088	
Efisiensi proses pengendapan, %	36,46%	48,31%	42,39% ± 8,38%
Cacahan Cs-137 dalam zeolit, cps	11,426	13,026	
Efisiensi proses penyerapan dalam zeolit, %	72,32%	76,23%	74,28% ± 2,76%
Rekoveri, %	24,32%	31,78%	28,05% ± 5,28%

Tabel 2. Data efisiensi dan rekoveri modifikasi proses pemisahan secara pengendapan langsung

Uraian	Pengulangan		Rerata
	Pertama	Kedua	
Cacahan larutan awal Cs-137, cps	44,766	45,936	
Cacahan Cs-137 dalam CsClO ₄ , cps	25,6232	26,7196	
Efisiensi proses pengendapan, %	57,24%	58,17%	57,71% ± 0,66%
Cacahan Cs-137 dalam zeolit, cps	23,8756	23,7756	
Efisiensi proses penyerapan dalam zeolit, %	93,18%	88,98%	91,08% ± 2,97%
Rekoveri, %	53,33%	51,76%	52,55% ± 1,11%

Hal ini disebabkan karena komposisi zeolit alam lebih kompleks sehingga kurang selektif terhadap isotop Cs-137. Proses pengendapan melalui modifikasi ini dilakukan dengan tujuan untuk mendapatkan factor koreksi pada analisis isotop Cs dalam larutan bahan bakar nuklir pasca iradiasi.

KESIMPULAN

Hasil analisis Cs-137 melalui pengendapan langsung dengan zeolit diperoleh 86,40% ± 0,1%, sedangkan hasil analisis Cs-137 melalui modifikasi proses pemisahan secara ekstraksi yang dilanjutkan dengan penangkapan oleh zeolit diperoleh rekoveri sebesar 28,05% ± 5,28% dan yang melalui modifikasi proses pengendapan secara ASTM diperoleh rekoveri sebesar 52,55% ± 1,11%. Dari hasil uji analisis tersebut disimpulkan bahwa penggunaan zeolit Lampung secara langsung lebih baik dari pada melalui proses modifikasi.

DAFTAR PUSTAKA

1. T.Las. 1989. "Use of Natural Zeolite for Nuclear Waste Treatment". PhD Thesis, Salford Univercity. The United Kingdom.
2. Sutarti dan Mursi. 1994. "Zeolit: Tinjauan Literatur". Pusat Dokumen Dan Informasi Ilmiah.S
3. G.G Holmes, S.R.Pecover. 1987. "Natural Zeolite". Department of Mineral Resources.
4. Dian Anggraini, Siti amini, Yusf Nampira, Noviarty. 2001. "Pemanfaatan Zeolit Lampung Untuk Penukar Kation Cs Dari Larutan Radioaktif Hasil Fisi". Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir VI. Jakarta, 7-8 Nopember.

HIDROKSILASI FENOL DENGAN MENGGUNAKAN KATALIS $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ YANG DIKALSIKASI PADA SUHU BERVARIASI

Anis Farika, Syafsir Akhlus, Didik Prasetyoko¹⁾

Department of Chemistry,
Faculty of Mathematic and Sciences,
Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS),
Surabaya, Indonesia, 60111

¹⁾ Corresponding author, Phone: +62-31-5943353, fax. +62-31-5928314
email: didikp@chem.its.ac.id

ABSTRAK

Katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ telah terbukti mempunyai aktivitas katalitik yang tinggi dibandingkan dengan TS-1 pada reaksi hidroksilasi fenol menjadi hidrokinon. Persiapan katalis menggunakan teknik impregnasi dengan menggunakan ammonium molibdat sebagai prekursor. Katalis dikalsinasi pada daerah suhu 400-800°C dan dikarakterisasi dengan menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD), adsorpsi piridin, dan uji hidrofilisitas. Suhu kalsinasi mempengaruhi sifat katalis dan berhubungan dengan aktivitas katalitik. Katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ yang telah dikalsinasi pada 400°C menunjukkan hidrofilisitas tertinggi dibandingkan dengan TS-1, dan menunjukkan kecepatan reaksi yang lebih cepat pada pembentukan hidroksilasi fenol dan menunjukkan kenaikan aktivitas katalitik dibandingkan dengan katalis awal, TS-1.

Kata kunci: hidroksilasi fenol, H_2O_2 , TS-1, $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$

ABSTRACT

THE PHENOL HYDROXYLATION USING A $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ CATALYST THAT CALCINED ON THE VARIOUS TEMPERATURE. $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ catalyst has been proven have a higher catalytic activity rather than TS-1 on phenol hydroxylation reaction become a hydroquinone. Preparation catalyst using a impregnasi technique with ammonium molybdate as a precursor. Catalyst calcined at temperature 400-800°C and characterized by X-Ray Diffraction (XRD), pyridin adsorption, and hydrophilicity test. Calcinations temperature affects a catalyst characteristic and related to catalyst activity. $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ catalyst has been calcined at temperature 400°C showed a higher hydrophilicity rather than TS-1, a faster speed reaction on phenol hydroxylation, and increasing of catalyst activity rather than initial catalyst, TS-1.

Keywords : phenol hydroxylation, H_2O_2 , TS-1, $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$

PENDAHULUAN

Titanium silikat (TS-1) telah ditemukan pada 1983 oleh Taramasso dkk, dan secara berangsur-angsur penemuan tersebut telah diakui sebagai tonggak bersejarah dalam katalisis heterogen (Yang *et al.*, 2007) [1]. Dengan menggunakan hidrogen peroksida (H_2O_2) sebagai oksidan, zeolit TS-1 menunjukkan performa yang sangat bagus terhadap berbagai macam proses oksidasi selektif dari hidrokarbon, alkana, dll. Diantara reaksi oksidasi tersebut, hidroksilasi fenol membentuk difenol (hidrokinon dan katekol) merupakan salah satu proses yang terpenting dan menjanjikan dalam industri kimia karena difenol merupakan produk yang memiliki manfaat yang cukup luas dalam bidang fotografi, kimia seperti sebagai inhibitor polimerisasi, anti oksidan karet dan makanan

serta dalam bidang farmasi (Klaewkla *et al.*, 2007) [2].

Reaksi hidroksilasi fenol menggunakan katalis TS-1 memberikan aktivitas dan selektivitas yang tinggi, merupakan "clean reaction", dekomposisi H_2O_2 non-produktif yang rendah, stabilitas katalis yang tinggi, dan dapat digunakan pada reaksi fase cair (Liu *et al.*, 2004) [3]. TS-1 mengurangi produk tar dan produk samping yang berpotensi sebagai polutan. Namun, disamping berbagai keunggulan yang dimiliki katalis TS-1, reaksi hidroksilasi fenol menggunakan katalis TS-1 menunjukkan laju reaksi yang rendah (Sun *et al.*, 2000) [4]. Mekanisme reaksi katalitik pada katalis TS-1 dengan menggunakan H_2O_2 diawali oleh adsorpsi H_2O_2 pada permukaan katalis membentuk spesies intermediet (kompleks Ti-Perokso), kemudian diikuti adsorpsi substrat katalis dengan Ti perokso yang pada akhirnya akan menghasilkan

produk difenol (Liu *et al.*, 2007; Bonino *et al.*, 2004) [5-6]. Karena H_2O_2 yang bersifat hidrofil dan TS-1 yang bersifat hidrofob maka laju H_2O_2 menuju TS-1 menjadi lambat, sehingga pembentukan Ti-perokso menjadi lambat. Penambahan sifat hidrofilik dapat dilakukan dengan penambahan oksida logam ke dalamnya sehingga meningkatkan keasaman. Penelitian dalam reaksi epoksidasi 1-oktena menunjukkan bahwa oksida logam yang terikat pada katalis TS-1 ternyata memberikan sisi asam Brønsted yang mampu meningkatkan sifat hidrofil katalis sehingga adsorpsi reaktan pada katalis menjadi lebih cepat (Prasetyoko, 2006; Prasetyoko, 2009 [7-8]).

Temperatur kalsinasi katalis juga merupakan salah satu parameter penting pada preparasi katalis, yang berhubungan dengan struktur dan sifat katalis (Tan *et al.*, 2002) [9]. Temperatur kalsinasi berbeda menyebabkan struktur berbeda yang berhubungan dengan sifat-sifat katalis seperti sifat keasaman. MoO_3 amorf menyediakan sisi asam Lewis lebih pada permukaan katalis dibandingkan MoO_3 kristalin (Liu *et al.*, 2007). Adanya dispersi MoO_3 pada ZrO_2 terbukti dapat meningkatkan aktivitas katalitik *cracking* cumena dan dehidrasi etanol. Hal ini dikarenakan adanya peningkatan sifat keasaman yaitu sisi asam Brønsted. Pada temperatur kalsinasi $550^\circ C$ katalis MoO_3/ZrO_2 mempunyai keasaman tertinggi dibandingkan pada temperatur kalsinasi lain. Meningkatnya temperatur kalsinasi diatas $550^\circ C$ menyebabkan berkurangnya Mo-O-Zr yang merupakan prekursor dari $Zr(MoO_4)_2$ sehingga menurunkan keasaman katalis (El-Sharkawy *et al.*, 2007) [10].

Indrayani (2008) [11] telah melaporkan pengaruh penambahan oksida logam MoO_3 pada TS-1, ternyata memberikan sisi keasaman dan sifat hidrofilitas katalis yang berbeda. Dan aktivitas terbesar katalis dihasilkan pada reaksi hidroksilasi fenol pada *loading* 1% $MoO_3/TS-1$. Sehingga pada penelitian ini akan diteliti pengaruh temperatur kalsinasi pada *loading* optimum yaitu 1% $MoO_3/TS-1$, terhadap aktivitasnya pada reaksi hidroksilasi fenol.

METODE PENELITIAN

Sintesis 1% $MoO_3/TS-1$

Katalis TS-1 disintesis dengan metode menurut Taramasso (Taramasso *et al.*, 1983) [12], sedangkan katalis 1% $MoO_3/TS-1$

disiapkan menggunakan metode impregnasi, yaitu titanium silikalit dimasukkan dalam larutan ammonium molibdat yang diperoleh dengan melarutkan amonium molibdat dalam air destilasi. Campuran titanium silikalit dalam larutan amonium molibdat tersebut diaduk dengan pengaduk magnet dan ditutup selama 3 jam, campuran dipanaskan pada temperatur $80-90^\circ C$ untuk menguapkan air. Padatan yang diperoleh, kemudian dikeringkan pada temperatur $110^\circ C$ selama 24 jam dan dikalsinasi pada temperatur $400^\circ C$, $500^\circ C$, $600^\circ C$, $700^\circ C$ dan $800^\circ C$ selama 5 jam.

Karakterisasi

Katalis TS-1 dan 1% $MoO_3/TS-1$ dengan kalsinasi $400^\circ C$, $500^\circ C$, $600^\circ C$, $700^\circ C$, $800^\circ C$ dikarakterisasi dengan teknik XRD dan spektroskopi FTIR untuk mengetahui strukturnya. Analisis keasaman permukaan dilakukan dengan meletakkan sampel yang telah ditekan dengan tekanan sekitar 2,5 ton pada pemegang sampel, dan dimasukkan ke dalam sel kaca yang terbuat dari pirex yang mempunyai jendela terbuat dari kalsium florida, CaF_2 . Selanjutnya, sel kaca dipanaskan pada suhu $400^\circ C$ selama 4 jam. Jenis sisi asam Brønsted dan Lewis ditentukan menggunakan molekul piridin sebagai basa. Piridin diadsorpsi pada suhu ruang selama satu jam, dilanjutkan dengan desorpsi pada $150^\circ C$ selama tiga jam. Spektra inframerah direkam pada suhu kamar pada daerah bilangan gelombang $1700-1400\text{ cm}^{-1}$.

Sifat hidrofilitas katalis diuji dengan metode dispersi dalam campuran xilena dan air. Sampel dimasukkan ke dalam campuran air dan xilena, dan diamati pergerakannya dalam masing-masing fasa dengan *stopwatch* kemudian diambil gambarnya menggunakan kamera. Selanjutnya campuran diaduk dengan pengaduk magnet selama 1 menit, kemudian dibiarkan kira-kira 10 menit sampai campuran stabil. Setelah itu masing-masing sampel diamati waktu pergerakannya dengan *stopwatch* dan diambil gambarnya menggunakan kamera.

Uji Aktivitas Katalitik Katalis pada Reaksi Hidroksilasi Fenol

Semua katalis hasil sintesis diuji aktivitasnya pada reaksi hidroksilasi fenol dengan pelarut metanol dan oksidan H_2O_2 (30% larutan berair). Sampling dilakukan setiap 0, 1, 2, dan 4 jam, kemudian dianalisis dengan meng-

gunakan teknik kromatografi gas (KG) menggunakan kolom polar PE-5 (25 m, 0.32 mm, 1.0 mm, 5% metil benzena silikon) dengan Flame Ionization Detector.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi

Katalis TS-1 dengan temperatur kalsinasi 550°C dan TS-1 kalsinasi 800°C, serta sampel 1%MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi 400, 500, 600, 700, 800°C dianalisa dengan menggunakan teknik XRD dan spektroskopi FTIR untuk mengetahui strukturnya, sifat keasaman permukaan dengan adsorpsi piridin yang kemudian dianalisa menggunakan teknik spektroskopi FTIR, dan uji sifat hidrofilik katalis menggunakan metode (Wang *et al.*, 2004) [13].

Karakterisasi XRD dilakukan pada katalis MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi (data tidak ditampilkan). Semua sampel secara umum menunjukkan pola difraksi sinar X dengan tipe struktur MFI dan simetri ortorombik dengan puncak-puncak spesifik yang merupakan puncak dari titanium silikalit-1, yaitu pada 2θ = 7.88; 8.78; 23.14; 23.9; 24.39; 24.78°. Terbentuknya puncak pada 2θ = 24° menunjukkan bahwa terdapat perubahan simetri kristal dari simetri monoklinik, yang merupakan simetri dari silikalit-1, menjadi ortorombik yang merupakan simetri dari titanium silikalit-1. Kemiripan difraktogram antara sampel TS-1 dan MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi mengindikasikan bahwa kerangka MFI bersifat stabil. Puncak-puncak fase kristalin MoO₃ tidak terdeteksi pada pola difraksi sinar-X sampel MoO₃/TS-1 disebabkan kandungan MoO₃ pada sampel MoO₃/TS-1 yang rendah yaitu 1%MoO₃.

Karakterisasi FTIR menunjukkan pita serapan pada bilangan gelombang sekitar 970 cm⁻¹ yang merupakan serapan khas dari TS-1. Pita serapan pada bilangan gelombang sekitar 970 cm⁻¹ tersebut merupakan vibrasi regangan ikatan Si-O dari unit [SiO₄] yang terikat secara tetrahedral pada atom Ti^{IV} yang terdapat dalam kerangka TS-1. Atom Ti^{IV} yang terisolasi secara tetrahedral dalam

matrik silika -(Si-O)₂-Ti-(O-Si)₂ ini merupakan pusat aktif katalitik dari katalis TS-1. Puncak 970 cm⁻¹ tetap ada setelah penambahan MoO₃ dan kalsinasi dengan berbagai variasi temperatur. Tidak terlihat adanya pergeseran pita maupun puncak tambahan yang muncul pada setiap spektrum.

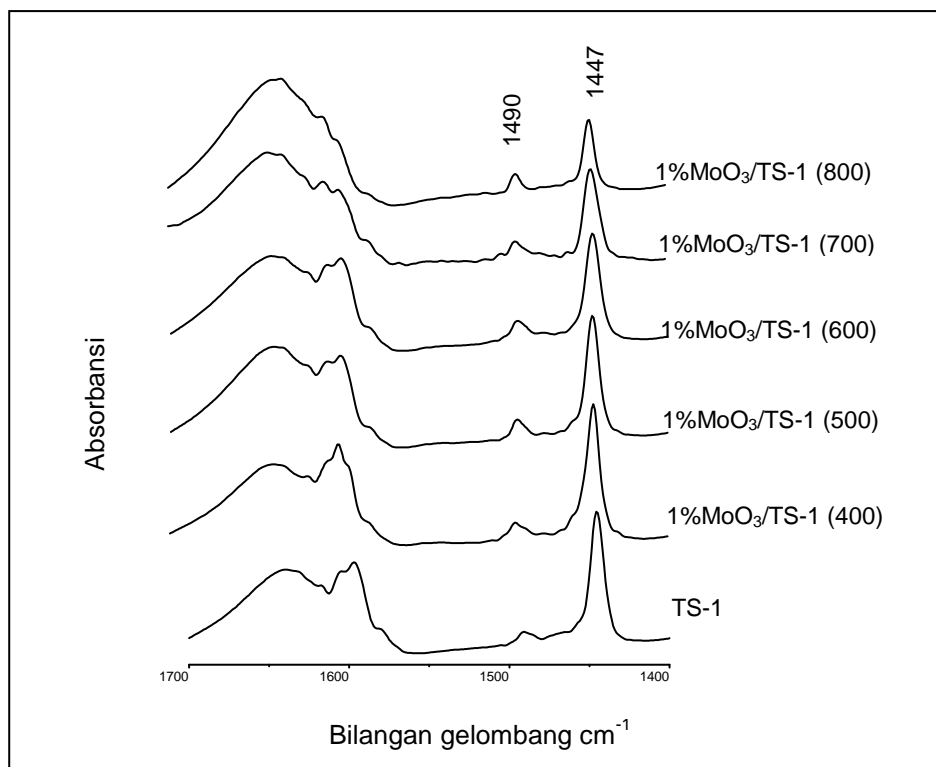
Analisa keasaman permukaan menunjukkan bahwa pada interaksinya dengan sisi asam Brønsted, molekul piridin terprotonasi dan teradsorpsi di bilangan gelombang inframerah sekitar 1540-1545 cm⁻¹, sedangkan interaksinya dengan sisi asam Lewis akibat pembentukan ikatan koordinasi antara molekul piridin dengan permukaan padatan memunculkan pita serapan pada daerah sekitar 1449-1452 cm⁻¹. Munculnya pita absorpsi pada 1490 cm⁻¹ merupakan kontribusi dari piridin yang teradsorpsi pada sisi asam Lewis dan Bronsted.

Gambar 1 menunjukkan spektra inframerah untuk semua sampel, dimana terdapat pita serapan pada bilangan gelombang 1447 cm⁻¹. Hal ini menunjukkan bahwa semua sampel mempunyai situs asam Lewis. Namun semua sampel tidak menunjukkan puncak pada daerah vibrasi piridin sekitar 1540 cm⁻¹ yang berarti tidak mempunyai sisi asam Brønsted dikarenakan kandungan MoO₃ pada TS-1 rendah yakni hanya 1%MoO₃. Jumlah sisi asam Lewis ditabulasikan pada Tabel 1. Secara umum terlihat bahwa penambahan MoO₃ pada sampel 1%MoO₃/TS-1 (400) menyebabkan sedikit peningkatan keasaman sampel, tetapi dengan peningkatan temperatur kalsinasi untuk sampel 1%MoO₃/TS-1 (400-800) secara umum menyebabkan penurunan jumlah sisi asam Lewis.

Sifat permukaan katalis yang berperan penting karena adanya penambahan MoO₃ pada permukaan TS-1 adalah sifat hidrofilitas. Hasil pengamatan pada tahap ini, semua sampel menunjukkan pergerakan dalam xilena lebih cepat sekitar 2-3 detik dibandingkan saat melewati air, lama kelamaan serbuk katalis tenggelam dalam air, namun terdapat sedikit serbuk yang masih tertinggal pada fasa antar muka.

Tabel 1. Sifat keasaman dan hidrofilitas dari sampel TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1

Kode Sampel	Asam Lewis (mmol/g)	Hidrofilitas: Waktu tenggelam (detik)
TS-1	0.1829	99
1%MoO ₃ /TS-1 (400)	0.1857	32
1%MoO ₃ /TS-1 (500)	0.1747	51
1%MoO ₃ /TS-1 (600)	0.1721	68
1%MoO ₃ /TS-1 (700)	0.1719	70
1%MoO ₃ /TS-1 (800)	0.1135	92



Gambar 1. Spektra FTIR daerah piridin dari sampel TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1 dengan variasi temperatur kalsinasi 400, 500, 600, 700, 800 setelah evakuasi pada temperatur 400°C diikuti adsorpsi piridin pada temperatur ruang dan desorpsi pada temperatur 150°C selama 3 jam

Oleh karena itu berdasarkan pengamatan dikategorikan ke dalam tipe hidrofobik parsial dengan nomor indeks 5 yaitu pada awalnya sampel tertahan pada fase antar muka, setelah pengadukan, beberapa partikel masih ada yang tetap tertahan pada fase antar muka.

Contoh foto hasil perlakuan ini pada sampel katalis 1%MoO₃/TS-1 (800) dapat dilihat pada Gambar 2. Terlihat pada Gambar 2 terdapat serbuk sampel pada antar muka. Serbuk ini secara perlahan-lahan turun sampai sedikit sekali yang masih tertinggal pada fasa antar muka. Selanjutnya campuran

diaduk dengan pengaduk magnet selama beberapa menit, kemudian dibiarkan beberapa menit sampai campuran stabil. Foto hasil uji sifat hidrofilik ini dapat dilihat pada Gambar 3. Terlihat semua sampel tenggelam pada permukaan air. Waktu yang diperlukan oleh sampel untuk tenggelam dalam air mulai dari permukaan air sampai dasar dicatat dan dicantumkan pada Tabel 1.

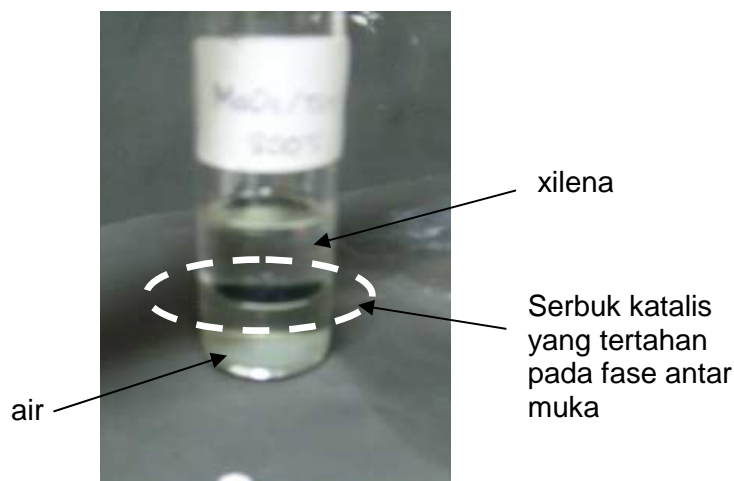
Pada Tabel 1 terlihat bahwa sampel dengan temperatur kalsinasi 400°C menunjukkan waktu tenggelam yang paling cepat yaitu 32 detik. Secara umum semakin tinggi temperatur kalsinasi, semakin lama waktu

tenggelamnya sampel dalam air sehingga sampel semakin bersifat hidrofobik. Hal ini kemungkinan terjadi karena dengan semakin tinggi temperatur kalsinasi, MoO_3 akan mengalami aglomerasi sehingga interaksi antara MoO_3 dengan TS-1 menjadi kurang baik. Selanjutnya aglomerasi MoO_3 menyebabkan luas permukaan MoO_3 semakin kecil, sehingga meningkatkan hidrofobitas sampel melakukan penyerapan air dan gugus hidroksil.

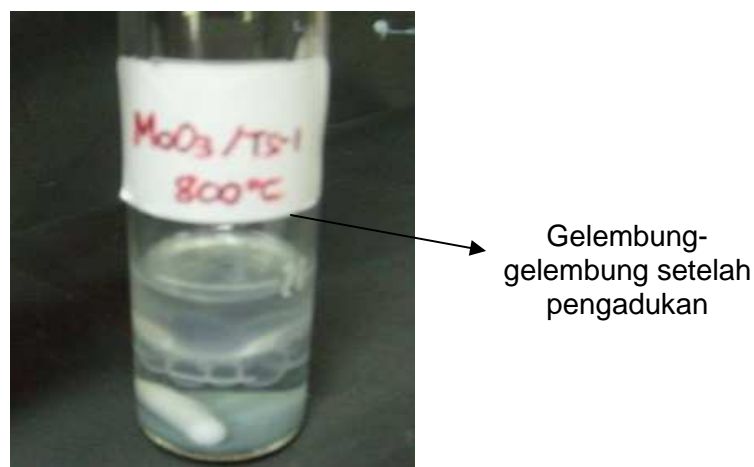
Aktivitas katalitik

Aktivitas katalitik dari TS-1 dan $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi diuji melalui reaksi hidroksilasi fenol dengan H_2O_2 sebagai agen pengoksidasi dalam pelarut metanol pada temperatur 70°C selama 4 jam dengan pengambilan sampel secara periodik pada waktu reaksi 0; 0.5; 1; 2 ; dan 4 jam. Hasil pengamatan selama reaksi menunjukkan adanya perubahan warna

campuran dari jernih menjadi coklat. Perubahan warna coklat ini bertambah tua dengan semakin lamanya waktu reaksi. Adanya perubahan warna ini mengindikasikan sudah terbentuknya produk. Namun penampakan warna coklat tersebut bukan mengindikasikan warna dari hidroquinon yang berwarna jernih, tetapi kemungkinan merupakan warna dari produk katekol yang mempunyai penampakan kecoklatan (MSDS, 2003). Adanya perubahan warna pada awal reaksi pada reaksi hidroksilasi fenol dengan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$, mengindikasikan bahwa produk lebih cepat terbentuk bila reaksi dilakukan dengan menggunakan katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ yakni dengan waktu reaksi 0.5 jam dibandingkan bila reaksi dilakukan dengan menggunakan katalis TS-1, karena reaksi dengan katalis TS-1 setelah 2 jam baru terlihat berwarna coklat yang mengindikasikan baru terbentuk produk.



Gambar 2. Uji hidrofilitas sebelum pengadukan pada sampel $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (800)



Gambar 3. Uji hidrofilitas sampel setelah pengadukan. Pada sampel $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (800)

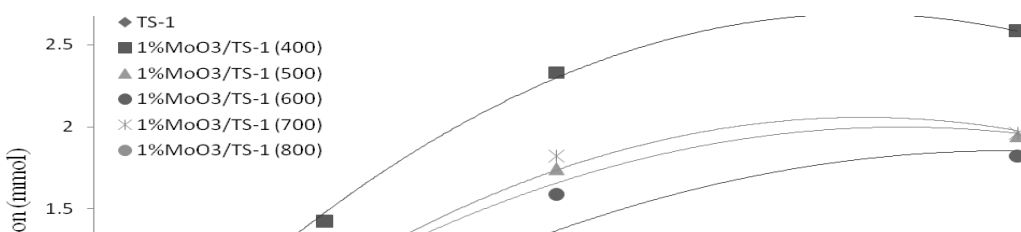
Produk hasil reaksi hidroksilasi fenol kemudian dianalisis dengan menggunakan peralatan Kromatografi Gas (KG) dan dihitung rasio luas puncak hidroquinon terhadap luas puncak internal standar nitrobenzen untuk menghitung produk hidroquinon yang terbentuk.

Grafik hasil jumlah produk hidroquinon hasil reaksi hidroksilasi fenol selama 4 jam pada katalis TS-1 dan MoO₃/TS-1 ditunjukkan pada Gambar 4. Pada Gambar 4, terlihat pada awal reaksi, semua katalis belum menghasilkan produk. Pada reaksi hidroksilasi fenol pada reaksi dengan katalis 1%MoO₃/TS-1 dengan temperatur kalsinasi 400, 500, 600 dan 700°C produk terbentuk setelah reaksi berlangsung selama 0,5 jam, dengan menggunakan katalis 1%MoO₃/TS-1 yang dikalsinasi pada temperatur 800°C mulai terbentuk produk setelah reaksi berlangsung satu jam, sedangkan dengan katalis TS-1 baru terbentuk pada reaksi setelah berlangsung 2 jam. Penemuan ini mengindikasikan adanya pengaruh penambahan MoO₃ pada TS-1, dimana dengan adanya penambahan MoO₃ pada TS-1 mengakibatkan TS-1 menjadi lebih hidrofil. Penambahan jumlah MoO₃ yang sama dengan temperatur kalsinasi yang berbeda juga memberikan pengaruh terhadap sifat hidrofilitas katalis. Pada temperatur 400, 500, 600, dan 700°C menunjukkan lebih hidrofil, terbukti dengan reaksi yang cepat terbentuk produk setelah berjalan 0,5 jam. Sementara pada temperatur 800 terbentuk produk setelah berjalan 1 jam, masih lebih cepat dari TS-1. Reaksi hidroksilasi fenol dengan katalis TS-1 berjalan dengan melibatkan Ti⁴⁺ sebagai pusat aktif. Adsorpsi oksidan H₂O₂ pada pusat aktif katalis akan menyebabkan pembentukan spesies titanium-perokso, yang sangat berperan dalam reaksi hidroksilasi fenol. Hal ini menunjukkan adanya pengaruh penambahan oksida logam MoO₃ pada TS-1, dimana katalis MoO₃/TS-1 lebih bersifat hidrofil dibandingkan dengan katalis TS-1, sehingga oksidan H₂O₂ lebih cepat teradsorpsi pada permukaan TS-1 yang telah ditambah dengan MoO₃ dan produk hidroquinon lebih cepat terbentuk. Hal ini sesuai dengan yang

diungkapkan oleh Nur *et al.* (2004) [14] dan Prasetyoko (2009), dimana keberadaan oksida logam pada katalis TS-1 memberikan sisi asam yang mampu meningkatkan sifat hidrofilitas katalis sehingga adsorpsi reaktan pada katalis menjadi lebih cepat.

Berdasarkan hasil reaksi hidroksilasi fenol pada Gambar 4 dapat diamati bahwa pada reaksi dengan katalis 1% MoO₃/TS-1 (400) menghasilkan produk paling banyak dibandingkan katalis 1% MoO₃/TS-1(500-800). Hal ini sesuai dengan data pada uji hidrofilisitas yang menunjukkan bahwa katalis 1%MoO₃/TS-1(400) memiliki hidrofilisitas yang lebih tinggi dari pada sampel lain yang mengakibatkan katalis ini memiliki kemampuan mengadsorpsi spesies H₂O₂ dengan cepat, sehingga pembentukan produk pada katalis tersebut masih lebih tinggi bila dibandingkan dengan katalis lain. Gambar 4 menunjukkan pada temperatur kalsinasi 400°C katalis 1%MoO₃/TS-1 menghasilkan mmol hidroquinon paling banyak disebabkan sifat hidrofilisitasnya tinggi, yang ditunjukkan dengan waktu tenggelam dalam air paling cepat.

Secara umum, hasil reaksi hidroksilasi fenol pada penelitian ini sesuai dengan data uji hidrofilisitas pada pembahasan sebelumnya bahwa aktivitas katalitik yang optimum pada katalis 1%MoO₃/TS-1 (400) disebabkan tingginya hidrofilisitas yang disebabkan tingginya keasaman katalis. Produk hidroquinon pada akhir reaksi untuk tiap-tiap katalis tampak masih tinggi yang mengindikasikan bahwa katalis masih aktif pada kondisi reaksi 4 jam, tetapi aktivitas katalitik katalis menjelang akhir reaksi cenderung menunjukkan penurunan dibandingkan pada saat awal reaksi. Hal ini dibuktikan dengan teramatinya peningkatan jumlah produk hidroquinon yang tidak begitu signifikan menjelang akhir reaksi dibandingkan pada awal reaksi. Seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4, terlihat kenaikan jumlah hidroquinon pada waktu reaksi 0.5 jam ke 1 jam, 1 jam ke 2 jam cukup tinggi jika dibandingkan dengan kenaikannya pada waktu reaksi 2 jam ke 4 jam.



Gambar 4. mmol hidroquinon pada waktu reaksi ke 0, 0,5 , 1, 2, dan 4 jam pada katalis TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1 (400-800)

KESIMPULAN

Katalis MoO₃/TS-1 yang dikalsin pada suhu 400°C menunjukkan aktivitas katalitik tertinggi pada reaksi hidroksilasi fenol dengan menggunakan hydrogen peroksida sebagai oksidan.

UCAPAN TERIMA KASIH

Kami sangat berterima kasih kepada direktorat jendral pendidikan tinggi, dibawah hibah pasca.

DAFTAR PUSTAKA

1. Yang, G., Lan, X., Zhuang, J., Ma, D., Zhou, L., Liu, X., Han, X., Bao, L., 2007, "Acidity and Defect Sites in Titanium Silicalite Catalyst", *Applied Catalysis A: General* vol 337, hal. 58-65
2. Klaewkla R., Kulprathipanja, S., Rangsunvigit P., Rirksomboon, T., Rathbun, W., Nemeth, L. (2007), "Kinetic Modelling of Phenol Hydroxylation Using Titanium and Tin Silicalite-1s: Effect of Tin Incorporation", *Chemical Engineering Journal*, Vol. 129, hal. 21-30.
3. Liu, X., Wang, X., Guo, X., Li, G., (2004), "Effect of Solvent on The Propylene Epoxidation Over TS-1 Catalyst", *Catalysis Today* Vol. 93-95, hal. 505-509.
4. Sun, J., Meng, X., Shi, Y., Wang, R., Feng, S., Jiang, D., Xu, R., Xiao, F-S. (2000), "A Novel Catalyst of Cu-Bi-V-O Complex in Phenol Hydroxylation with Hydrogen Peroxide", *Journal of Catalysis*, Vol. 193, hal. 199-206.
5. Liu, Y., Ma, X., Wang, S., Gong, J. (2007), "The Nature of Surface Acidity and Reactivity of MoO₃/SiO₂ and MoO₃/TiO₂-SiO₂ for Transesterification of Dimethyl Oxalate with Phenol: A Comparative Investigation", *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 77, hal. 125-134.
6. Bonino, F., Damin, A., Ricchiardi, G., Ricci, M., Spano, G., D'Aloisio, R., Zecchina, A., Lamberti, C., Prestipino, C., Bordiga, S. (2004), "Ti-Peroxo Species in The TS-1/H₂O₂/H₂O System", *Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 108, hal. 3573-3583.
7. Prasetyoko, D. (2006), Bifunctional Oxidative and Acidic Titanium Silicalite (TS-1) Catalysts for One Pot Synthesis of 1,2-Octanediol from 1-Octene, Disertasi Doktor, Universiti Teknologi Malaysia, Malaysia.
8. Prasetyoko, D. (2009), "Tungsten Oxides-Containing Titanium Silicalite for Liquid Phase Epoxidation of 1-octene with Aqueous Hydrogen Peroxide", *Catalyst Letters*, Vol.12, hal.177-182.
9. Tan, P.L., Leung, Y.L., Lai, S.Y., Au C.T.(2002), " The Effect of Calcination Temperatur on The Catalytic - Performance of 2%Mo/HZSM-5 in methane aromatization", *Applied Catalysis. A*, Vol. 228, hal.115-125.

10. El-Sharkawy, E.A., Khder, A.S., Ahmed, A.I. (2007), "Structural Characterization and Catalytic Activity of Molybdenum Oxide Supported Zirconia Catalysts", *Microporous and Mesoporous Materials*, Vol.102, hal. 128-137.
11. Indrayani, S. (2008), "Aktifitas Katalitik MoO₃/TS-1 pada Reaksi Hidroksilasi Fenol menggunakan H₂O₂", Tesis: Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
12. Taramasso, M., Perego, G., Notari, B. (1983), *Preparation of Porous Crystalline Synthetic Material Comprised of Silicon and Titanium Oxides*. (U. S. Patents No. 4,410,501).
13. Wang, Z., Wang, T., Wang, Z., Jin, Y. (2004), "Organic modification of ultrafine particles using carbon dioxide as the solvent", *Journal of Powder Technology*, Vol. 139, hal. 148-155.
14. Nur, H., Prasetyoko, D., Ramli, Z., Endud, S. (2004), "Sulfation: A simple Method to Enhance the Catalytic Activity of TS-1 in Epoxidation of 1-Octene with Aqueous Hydrogen Peroxide", *Catalysis Communication*, Vol.5, hal.725-728.