

# Sintesis Membran Keramik Berbasis Nano Partikel Zeolit, Kaolin, dan Karbon Aktif Tempurung Kelapa Sawit dengan Metode Sintering

Nahar<sup>1</sup>, Sariadi<sup>2</sup>, Nanang. R.W<sup>3</sup>, Novi.Q.R<sup>4</sup>, Selvie Diana<sup>5</sup>

<sup>1,2,3,5</sup> Jurusan Teknik Kimia Politeknik Negeri Lhokseumawe

<sup>4</sup> Jurusan Teknik Elektro Politeknik Negeri Lhokseumawe

Jln. B.Aceh Medan Km.280 Buketrata 24301 INDONESIA

<sup>1</sup>nahar@pnl.ac.id

<sup>5</sup>selviediana@pnl.ac.id

**Abstrak**— Sintesis membran keramik menggunakan metode sintering pada suhu 500°C, 550°C, 600°C, 650°C, 700°C dan 1000°C dengan variasi nanopartikel zeolit(Z):kaolin(K): karbon aktif (C):PVA menjadi 40%:30%:25%:5% (ZKC1) dan 35%:40%:20%:5% (ZKC2) telah dilakukan. Hasil penelitian didapatkan membran ZKC1 pada suhu sintering 1000°C memiliki nilai permeabilitas dengan klasifikasi ultrafiltrasi yaitu sebesar 45,619 L/m<sup>2</sup>.jam.bar dan nilai porositas 37,68%.

**Kata kunci**— kaolin, karbon aktif, membran keramik, nano-partikel, sintering, zeolit

**Abstract**— Ceramic membranes composed of nano-zeolite (Z), nano-kaolin (K), nano-activated carbon (C), and PVA have been fabricated by using the sintering method at 500°C, 550°C, 600°C, 650°C, 700°C, and 1000°C. The membranes were made with a Z:K:C:PVA composition of 40%:30%:25%:5% (ZKC1) and 35%:40%:20%:5% (ZKC2). The results showed that the ZKC1 membrane, at a sintering temperature of 1000 °C, had a permeability value with an ultrafiltration classification of 45.619 L/m<sup>2</sup>.hour.bar and a porosity value of 37.68%.

**Keywords**— activated carbon, ceramic membrane, kaoline, nano-particle, sintering, zeolite.

## I. PENDAHULUAN

Dewasa ini membran keramik untuk berbagai aplikasi semakin dikembangkan dan diterapkan dikarenakan stabilitas termal, kimia dan mekanik membran keramik sangat baik serta memiliki efisiensi pemisahan yang tinggi dibandingkan membran polimer [1]. Membran keramik umumnya terbuat dari bahan anorganik seperti silika, alumina, titania, zirkonia dan kaolin, akan tetapi bahan-bahan tersebut memiliki harga yang relatif mahal [2-3]. Zeolit dan kaolin yang banyak terdapat di alam serta tempurung kelapa sawit yang merupakan limbah industri minyak kelapa sawit dapat dijadikan bahan campuran pembuatan membran keramik dengan harga yang relatif murah. Zeolit yang mengandung pori-pori dan rongga memiliki sifat selektivitas tinggi, mampu melakukan pertukaran ion dan memiliki stabilitas thermal yang tinggi [4]. Kaolin mempunyai sifat perilaku hidrofilik yang sangat mendukung proses filtrasi [5]. Sementara itu karbon aktif dari limbah tempurung kelapa sawit merupakan agen pembentuk pori dan memberikan sifat mekanik yang baik bagi membran keramik [6].

Metode sintering dengan suhu tinggi kerap dilakukan untuk memperluas permukaan membran [7], namun penggunaan temperatur yang tinggi menyebabkan konsumsi energi yang dibutuhkan juga tinggi sehingga biaya fabrikasi membran menjadi lebih mahal. Salah satu teknologi yang dapat memperluas permukaan material adalah teknologi nanopartikel. Partikel ukuran nano akan memberikan sifat unik relatif terhadap partikel tersebut dimana partikel dengan ukuran nano akan memperluas permukaan material membran sehingga persen rejeksi menjadi meningkat [2].

Pembuatan membran keramik berbahan ekonomis seperti zeolit, kaolin, fly ash dan clay dengan menggunakan metode sintering dengan suhu diatas 1000 °C sudah dipelajari sebelumnya oleh beberapa peneliti. S.B Rekik et.al menggunakan kaolin clay sebagai bahan dasar pembuatan

membran keramik yang menghasilkan membran dengan ukuran diameter pori 0,73 µm pada temperature sintering 1250 °C [8]. Sementara itu pembuatan membran dengan metode sintering dibawah 1000 °C berbasis kaolin, clay dan fly ash menghasilkan membran dengan ukuran pori 0,6 µm [9], 1,2 µm [10], dan 1,6 µm [11] dimana belum mencapai ukuran nanopartikel. Berdasarkan latar belakang dan permasalahan diatas maka pada penelitian ini akan dilakukan sintesis membran keramik menggunakan bahan dengan harga yang ekonomis yaitu kaolin, clay dan karbon aktif tempurung kelapa sawit berukuran nano untuk memperluas permukaan membran serta proses sintering membran yang dilakukan pada suhu rendah yaitu 500 sampai 1000°C, sehingga dapat menghasilkan membran keramik yang berharga ekonomis.

## II. METODOLOGI PENELITIAN

Sintesis membran keramik berbasis nano partikel zeolit (Z), kaolin (K) dan karbon aktif tempurung kelapa sawit (C) (membran nano-ZKC) dilakukan dengan proses sintering pada suhu 500°C, 550°C, 600°C, 650°C, 700°C dan 1000°C dengan variasi bahan Z:K:C:PVA menjadi 40%:30%:25%:5% dan 35%:40%:20%:5%. Membran dibuat berbentuk plate dengan diameter 5,5 cm dan tinggi 0,5 cm. Membran yang dihasilkan diuji nilai fluks, porositas, densitas dan morfologi membran menggunakan alat SEM *Scanning Electron Microscope*.

### A. Material

Zeolit, clay dan karbon aktif tempurung kelapa sawit sebagai bahan utama pembuatan membran merupakan bahan komersial yang dibeli dari PT. Rudang Jaya, Medan, Indonesia. Polyvinyl Alcohol (PVA) yang digunakan sebagai perekat (Sigma, Aldrich).

**B. Prosedur Penelitian Pembuatan Membran Keramik Nano partikel ZKC [9]:**

Masing-masing Zeolit, Kaolin dan Karbon Aktif Tempurung Kelapa Sawit dimasukkan ke dalam ball mill lalu dihaluskan menjadi nanopartikel selama 40 jam. Nano partikel Zeolit (40%)+ nano partikel kaolin(30%)+ nano partikel karbon aktif tempurung kelapa sawit (25%)+Polivinil Alkohol PVA (5%) = 100gr dipindahkan kedalam gelas beaker dan diberi label. Sebanyak 45 ml air ditambahkan kedalamnya (campuran nano partikel zeolit,kaolin, karbon aktif tempurung kelapa sawit,PVA), sedikit demi sedikit sampai habis, disertai dengan pengadukan hingga terbentuk pasta. Pencetakan membran dilakukan dengan menuangkan pasta campuran tersebut ke dalam cetakan membran dan panaskan di dalam oven pada temperatur 29 °C selama 3 x 24 jam. Setelah dipanaskan membran dikeluarkan dari cetakannya, kemudian dilanjutkan dengan proses sintering pada suhu 500 °C - 1000 °C selama 4 jam.

**C. Prosedur Penentuan Fluks Membran**

Air umpan (aquades) dimasukkan kedalam tangki umpan. Tekanan operasi diatur pada 1 bar. Kemudian umpan akan melewati membran dan diukur volume larutan persatuan waktu persatuan luas membran. Data hasil yang didapatkan selanjutnya diolah menjadi data fluks dengan satuan L/jam.m<sup>2</sup>.bar menggunakan persamaan berikut:

$$J = \frac{V}{A.t}$$

Dimana:

J = fluks ( l/m<sup>2</sup>.jam)

V = volume permeat (liter)

A = luas permukaan membran (m<sup>2</sup>)

t = waktu penyaringan (jam)

**D. Prosedur Penentuan Densitas Membran**

Membran yang telah dibentuk ditepatkan (*fitting*) kembali dengan cetakannya. Jika kelebihan volume atau ketebalan membran terhadap cetakan, maka dilakukan pengikisan atau penghalusan menggunakan kertas amplas. Lalu dihitung volume membran dengan mengukur diameter membran dan ketebalan membran menggunakan mistar. Kemudian membran dalam keadaan kering ditimbang dan dicatat hasilnya sebagai massa kering membran (M<sub>dry</sub>). Perlakuan yang sama dilakukan pada masing-masing tipe sampel membran lainnya. Data hasil pengukuran volume dan massa kering membran selanjutnya diolah menjadi data densitas membran dengan persamaan berikut:

$$\rho = \frac{M (gr)}{V (cm^3)}$$

Dimana :

ρ = densitas membran (gr/cm<sup>3</sup>)

M = massa membran (gr)

V = volume membran (cm<sup>3</sup>)

**E. Prosedur Penentuan Porositas Membran**

Membran disiapkan setelah proses *furnance* sebanyak 3 membran. Membran 1 dalam keadaan kering dilakukan penimbangan dan dicatat hasilnya sebagai berat membran kering (W<sub>1</sub>). Membran 2 dimasukkan kedalam *beaker glass*

yang diisi aquadest dan diukur dalam air sebagai W<sub>2</sub>. Membran 3 dimasukkan kedalam *beaker glass* yang diisi aquadest dan didiamkan selama 48 jam dan setelah itu ditimbang (W<sub>3</sub>). Data hasil penimbangan membran selanjutnya diolah menjadi data porositas membran. Porositas masing – masing membran dihitung menggunakan metode *Archimedes* sebagai berikut:

$$\varepsilon = \frac{W_3 - W_1}{W_3 - W_2}$$

Dimana :

ε = porositas

W<sub>1</sub> = berat membran kering

W<sub>2</sub> = berat membran basah yang diukur di dalam air

W<sub>3</sub> = berat membran yang diisi air selama 48 jam

**III. HASIL DAN PEMBAHASAN**

**A. Hasil Penelitian**

Penelitian ini dimulai dengan membuat membran keramik berbahan dasar campuran nano zeolit, nano kaolin dan nano karbon aktif tempurung kelapa sawit (ZKC). Reduksi ukuran setiap bahan menjadi ukuran nano dilakukan dengan proses milling selama 40 jam. Komposisi nano ZKC yang digunakan adalah 40%:30%:25% (ZKC1) dan 35%:40%:20% (ZKC2) dengan penambahan PVA 5% pada setiap komposisi. Membran ZKC1 dan ZKC2 yang sudah dicetak kemudian disintering pada suhu 500 °C, 550°C, 600°C, 650°C dan 700°C dan 1000°C selama 4 jam. Setelah proses sintering selesai dilakukan kemudian membran ZKC1 dan ZKC2 dikarakterisasi dengan melakukan uji porositas, uji densitas dan morfologi permukaan membran serta dilakukan uji kinerja membran dengan melakukan uji permeabilitas air murni.

**B. Porositas dan Densitas Membran**

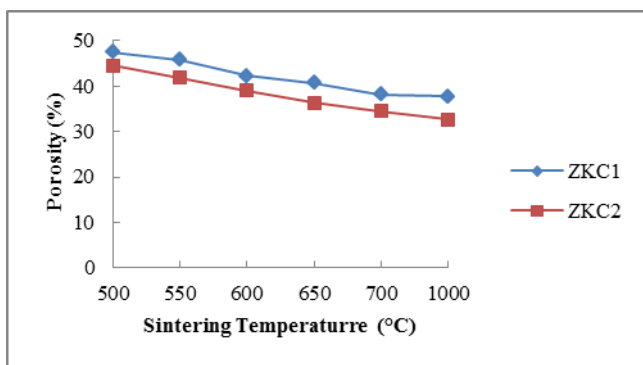
Proses sintering merupakan proses pemadatan material serbuk dengan cara membentuk ikatan batas butir antar serbuk penyusunnya. Ikatan antar butir terjadi akibat adanya perlakuan thermal dengan atau tanpa penekanan dan temperatur sintering diatur dibawah temperatur titik leleh dari partikel penyusunnya. Perlakuan thermal yang terdapat pada proses ini menyebabkan terjadinya difusi antar partikel-partikel penyusun membran dimana partikel-partikel tersebut akan saling bersentuhan sehingga terjadi peningkatan kepadatan serbuk partikel penyusun dan bidang kontak antar partikel menjadi lebih baik [16]

Komposisi bahan penyusun membran serta temperatur sintering mempengaruhi proses difusi partikel yang dapat dilihat dari nilai porositas dan densitas membran. Seperti yang terlihat pada Gambar IV.1 dimana porositas terbesar dimiliki oleh membran ZKC1 sebesar 47,5% pada temperatur sintering 500°C. Hal ini disebabkan membran ZKC1 (Z:K:C:PVA=40%:30%:25%:5%) memiliki komposisi zeolit dan karbon aktif tempurung kelapa sawit yang lebih besar daripada membran ZKC2. Zeolit yang merupakan partikel yang berrongga serta karbon aktif tempurung kelapa sawit yang merupakan agen pembentuk pori sangat berpengaruh terhadap besarnya porositas membran ZKC1 [4,6].

Berdasarkan Gambar 1. terlihat nilai porositas menurun seiring dengan meningkatnya suhu sintering. Peningkatan

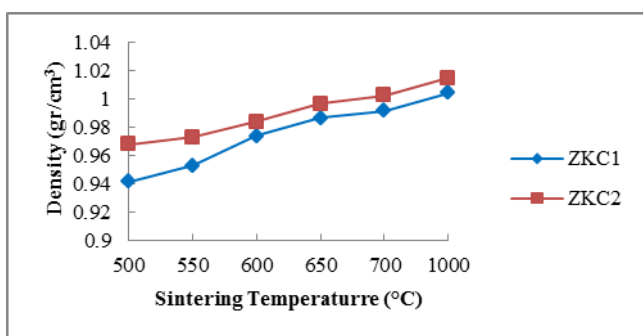
temperatur sintering menyebabkan bidang kontak antar partikel-partikel menjadi lebih luas dan struktur porositas pun menjadi lebih halus sehingga menyebabkan ruang kosong untuk porositas juga semakin mengecil.

Dari Gambar 1. juga diketahui nilai porositas terkecil dimiliki oleh membran ZKC2 (Z:K:C:PVA=35%:40%:20%:5%) yaitu sebesar 32,64 % pada temperatur sintering 1000°C. Peningkatan temperatur sintering menyebabkan bidang kontak antar partikel-partikel menjadi lebih luas dan struktur porositas pun menjadi lebih halus sehingga menyebabkan ruang kosong untuk porositas juga semakin mengecil [16]. Zeolit dan karbon aktif tempurung kelapa sawit sebagai agen pembentuk pori yang lebih dominan pada membran ZKC2 memiliki komposisi yang lebih rendah dibandingkan membran ZKC1. Hal ini menyebabkan nilai porositas membran ZKC2 lebih rendah.



Gambar 1. Pengaruh Temperatur Sintering dan Komposisi Membran terhadap Porositas Membran ZKC1 (Z:K:C:PVA= 40%:30%:25%:5%) dan Membran ZKC2 (Z:K:C:PVA= 35%:40%:20%:5%)

Ukuran partikel nano dari masing-masing membran ZKC1 dan ZKC2 sangat mempengaruhi proses sintering dimana semakin banyak jumlah partikel berukuran kecil maka energi yang dimiliki untuk proses difusi lebih besar sehingga kepadatan partikel juga semakin besar. Semakin besar kepadatan partikel mengakibatkan tingkat eliminasi porositas juga semakin tinggi sehingga menyebabkan menurunnya nilai porositas seiring dengan bertambahnya suhu sintering [9].



Gambar 2. Pengaruh Temperatur Sintering dan Komposisi Membran terhadap Densitas Membran ZKC1 (Z:K:C:PVA= 40%:30%:25%:5%) dan Membran ZKC2 (Z:K:C:PVA= 35%:40%:20%:5%)

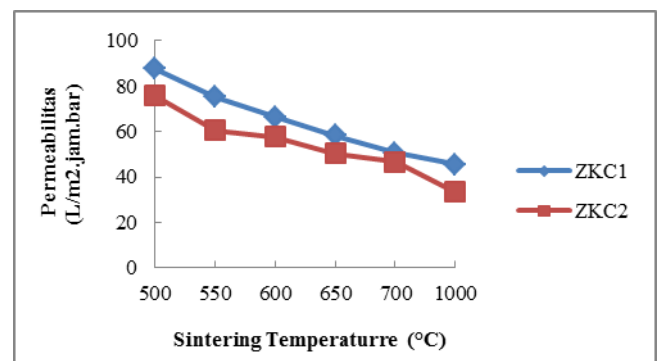
Porositas membran yang terbentuk juga mempengaruhi nilai densitas membran, dimana semakin kecil porositas membran maka densitas membran akan meningkat. Seperti yang disajikan pada Gambar 2. dimana nilai densitas terbesar dimiliki oleh membran ZKC2 pada temperatur 1000°C yaitu sebesar 1,0152 gr/cm<sup>3</sup>. Peningkatan temperatur sintering mempengaruhi proses pertumbuhan dan pematangan partikel

tersebut dimana semakin tinggi suhu sintering maka persen kepadatan partikel juga semakin besar sehingga nilai densitas juga semakin meningkat. Ukuran partikel nano dari zeolit, kaolin dan karbon aktif tempurung kelapa sawit juga mempengaruhi kepadatan membran dimana daya dorong partikel yang berukuran nano untuk berdifusi menjadi lebih tinggi sehingga semakin banyak partikel yang berinteraksi membentuk partikel yang lebih besar kepadatannya.

### C. Permeabilitas Membran ZKC

Permeabilitas membran merupakan laju alir permeate yang melewati membran dengan adanya gaya dorong berupa tekanan. *Fluks* membran keramik adalah suatu ukuran yang mengukur kecepatan jumlah volume permeate yang melewati membran keramik persatuan luas permukaan persatuan waktu dengan gradien tekanan sebagai gaya pendorong. Permeabilitas dan fluks membran menjadi salah satu faktor penentu kinerja membran. Pada penelitian ini tekanan operasi untuk menentukan permeabilitas membran adalah 1 bar. Dari Gambar 3. diketahui nilai fluks tertinggi dimiliki oleh membran ZKC1 yang disintering pada temperatur 500°C yaitu sebesar 87,547 L/m<sup>2</sup>.jam.bar. Hal ini menunjukkan komposisi zeolit dan karbon aktif tempurung kelapa sawit sebanyak 25% mampu meningkatkan porositas membran sehingga nilai permeabilitas juga meningkat. Kandungan zeolit dan kaolin sebanyak 40% dan 30% juga dapat meningkatkan jumlah pori dan rongga untuk mendukung kinerja filtrasi sehingga banyak larutan air umpam yang dapat masuk kepori-pori membran keramik dan melewati membran keramik[17].

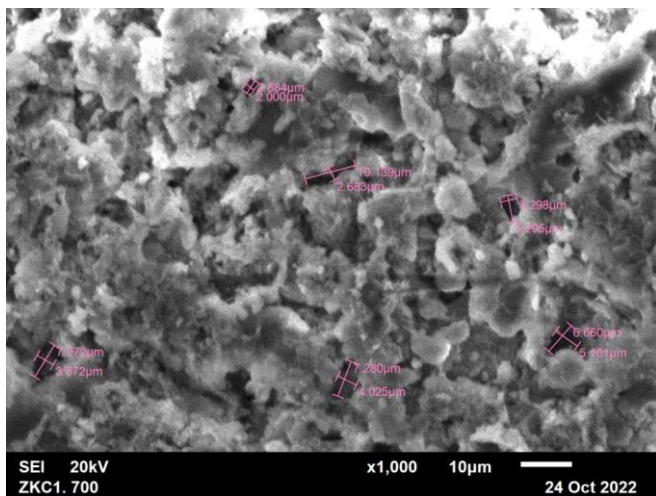
Penurunan nilai permeabilitas air murni pada titik terendah dimiliki oleh membran ZKC2 dengan temperatur sintering 1000°C yaitu sebesar 33.291 L/m<sup>2</sup>.jam.bar Peningkatan temperatur sintering menjadi 1000°C mempengaruhi proses difusi antar partikel membran menjadi lebih luas dan pada akhirnya mempengaruhi struktur porositas membran yang semakin mengecil. Porositas membran yang rendah menyebabkan nilai fluks dan permeabilitas membran juga rendah. Dari Gambar 3. juga terlihat nilai permeabilitas membran ZKC1 dan ZKC2 dari temperatur sintering 650°C-1000°C berkisar dari 50,439 L/m<sup>2</sup>.jam.bar – 33,291 L/m<sup>2</sup>.jam.bar. Hal ini menunjukkan membran tersebut masuk ke dalam klasifikasi membran ultrafiltrasi dimana untuk membran ultrafiltrasi yang beroperasi pada tekanan 1-5 bar memiliki nilai permeabilitas 10-50 L/m<sup>2</sup>.jam.bar [18].



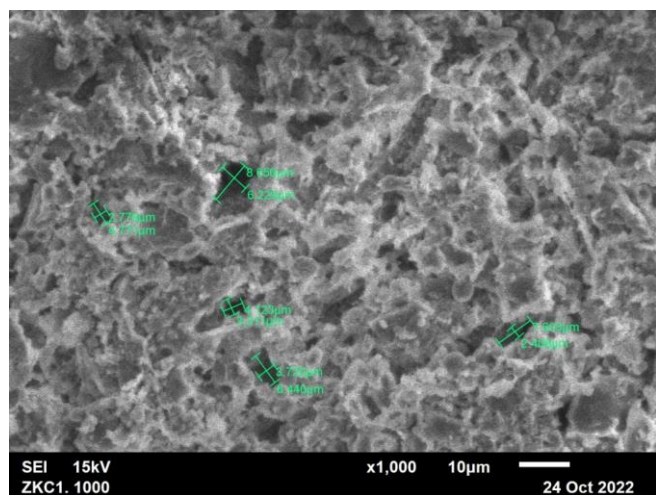
Gambar 3. Pengaruh Temperatur Sintering dan Komposisi Membran terhadap Permeabilitas Membran ZKC1 (Z:K:C:PVA= 40%:30%:25%:5%) dan Membran ZKC2 (Z:K:C:PVA= 35%:40%:20%:5%)

### D. Struktur Morfologi Membran ZKC

Analisa struktur morfologi membran bertujuan untuk dapat melihat struktur membran. Analisa morfologi menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscope*). Pengamatan SEM dilakukan terhadap membran ZKC1 yang disintering pada suhu 700°C dan 1000°C dengan komposisi zeolit 40%, kaolin 30%, karbon aktif tempurung kelapa sawit 25% dan PVA 5% . Dari Gambar 4. dan Gambar 5. terlihat permukaan membran ZKC1 yang disintering pada suhu 700°C (Gambar 4) memiliki porositas membran yang lebih besar daripada permukaan membran ZKC1 yang disintering pada suhu 1000°C (Gambar 5) dimana terlihat partikel-partikel sudah membentuk ikatan satu sama lain dan porositas yang terbentuk juga berkurang. Peningkatan temperatur sintering dari 700°C menjadi 1000°C menyebabkan partikel yang lebih kecil mulai meleleh dan mulai membentuk leher sintering [5].



Gambar 4. Struktur Morfologi Membran ZKC1 pada Suhu 700°C



Gambar 5. Struktur Morfologi Membran ZKC1 pada Suhu 1000°C

#### IV. KESIMPULAN

Membran ZKC1 dengan komposisi zeolit 40%, kaolin 30%, karbon aktif tempurung kelapa sawit 25%, dan PVA 5% dengan suhu sintering 1000°C memiliki nilai permeabilitas

dengan klasifikasi ultrafiltrasi sebesar 45,619 L/m<sup>2</sup>.jam.bar dengan nilai porositas 37,68%.

#### REFERENSI

- [1] G. Mustafa, K.Wyns, S. Janssens, A. Buekenhoudt, V. Meynen, "Evaluation of The Fouling Resistance of Methyl Grafted Ceramic Membrane for Inorganic Foulant and co-Effect of Organic foulant". *Sep.Purif.Technology*. 193 (2018) 29-37.
- [2] Y.Yin, H.Wang, D.Li, W.Jing, Y.Fan, W.Xing, "Fabrication of Mesoporous titania-Zirconia Composite Membranes Based on Nanoparticles Improved Hydrosol", *Journal Colloid Interface Science*. 478 (2016) 136.
- [3] Gu, C.Ren, X.Zong, C.Chen, L.Winnubst, "Preparation of Alumina Membranes Comprising a Thin Separation Layer and Support with Straight Open Pores for Water Desalination", *Ceramic International*. 42 (2016) 12427.
- [4] Song W., Justice R.E., Jones C.A., Grassian V.H., Larsen S.C., "Synthesis, Characterization, and adsorption Properties of Nanocrystalline ZSM-5", *Langmuir*, 20 (2004), pp. 8301-8306.
- [5] Nugraha, I, dan Kulsum, U, "Sintesis dan Karakterisasi Material Komposit Kaolin-ZVI ( Zero Valent Iron ) serta Uji Aplikasinya sebagai Adsorben Kation Cr (VI)". *Jurnal Kimia Valensi: Jurnal Penelitian dan Pengembangan Ilmu Kimia*. 3 (1), (2017), hal. 59-70
- [6] Abechi S.E., Gimba C.E, Uzairu A, Dallatu Y.A, "Preparation and Characterization of Activated Carbon from Palm Kernel Shell by Chemical Activation", *Research Journal of Chemical Sciences*, Vol. 3(7), (2013), 54-61
- [7] Dong Zoua, Minghui Qiu, Xianfu Chena, Enrico Driolib, Yiqun Fana, "One step co-sintering process for low-cost fly ash based ceramic microfiltration membrane in oil-in-water emulsion treatment". *Separation and Purification Technology*, 210 (2019) 511–520.
- [8] Rezik, S., Bouaziz, J., Deratani, A. and Beklouti, S, "Study of Ceramic Membrane from Naturally Occurring-Kaolin Clays for Microfiltration Applications", *Periodica Polytechnica Chemical Engineering*, 61(3). (2017) 206-215.
- [9] S. Diana, R. Fauzan, N. Arahman, F. Razi, and M. Bilad, "Synthesis and Characterization of Ceramic Membrane from Fly Ash and Clay Prepared by Sintering Method at Low Temperature," *Rasayan J. Chem.*, vol. 13, (2020), pp. 1335–1341.
- [10] E. Elfiana, S. Diana, A.Fuadi, R.Fauzan, "Characterization Study of Inorganic Hybrid Membrane of Mixed Activated Zeolit and Clay with PVA Adhesives using Sintering Method for colourless Peat Water" *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* 536 012036 (2019).
- [11] S. Diana, R. Fauzan, E. Elfiana, "Removing Escherichia Coli Bacteria in River Water using Ceramic Membrane from Mixed Clay and Fly Ash Material", *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* 536 012089 (2019)
- [12] Wu, Peng et.al., "A review of Preparation Techniques of Porous Ceramic Membranes", *Journal of Ceramic Processing Research*, Vol.16 No.1, (2015), pp. 102-106.
- [13] Khemakhem, S., Amar,R.B., and Larbot,A., "Synthesis and Characterization of Nee Inorganic Ultrafiltration Membrane Composed Entirely of Tunisian Natural Lite Clay", *Desalination Journal*, Vol.206 N0.1 (2007), pp.210-214.
- [14] Mintova S, "Nanosized Molecular Sieves", *Journal of Chem. Society, Chem. Comm.* 68, (2003), pp. 2032-2054.
- [15] Mouiya M, Abourriche A, Bouazizi A, Benhammou A, El Hafiane Y, Abouliatim Y, et al. "Flat ceramic microfiltration membrane based on natural clay and Moroccan phosphate for desalination and industrial wastewater treatment", *Desalination*, 427(2018), pp. 42–50
- [16] Cui, Z. "Sintering Method for Ceramic Membrane Preparation. *Encyclopedia of Membranes*", 1783-1784, doi: 10.1007/978-3-662-44324-8\_1803.
- [17] Ekpunobi UE, Agbo SU, Ajiwe VIE. "Evaluation of the mixtures of clay, diatomite, and sawdust for production of ceramic pot filters for water treatment interventions using locally sourced materials", *J Environ Chem Eng*. 2019;7(1). doi:10.1016/j.jece.2018.11.036.
- [18] Elma M. "Proses Pemisahan Menggunakan Teknologi Membran", *Lambung Mangkurat University Press*, (2017), ISBN: 978-602-5483-35-5.