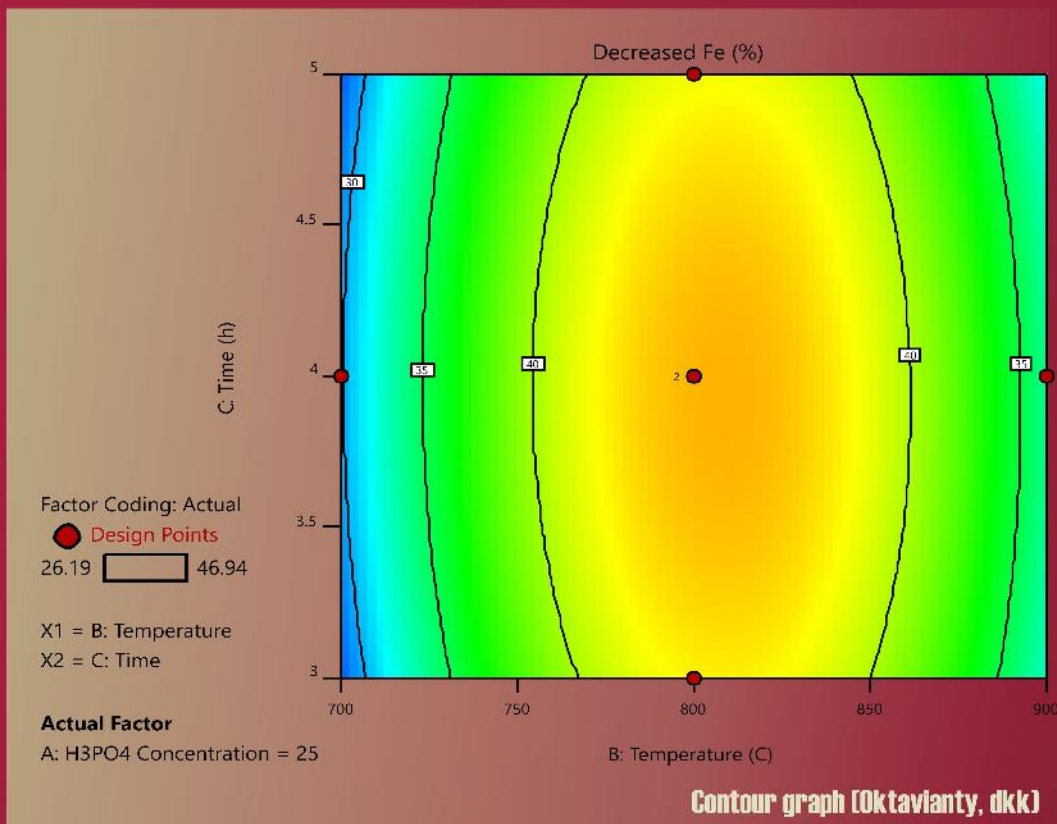




CHEESA

CHEMICAL ENGINEERING RESEARCH ARTICLES



EDITORIAL BOARD

CHEESA: Chemical Engineering Research Articles

Publisher Universitas PGRI Madiun

Editor in Chief Mohammad Arfi Setiawan, Universitas PGRI Madiun

Associate (Handling) Editors Dr. Heri Septya Kusuma, UPN Veteran Yogyakarta
Khoirul Ngibad, Universitas Maarif Hasyim Latif
Dyan Hatining Ayu Sudarni, Universitas PGRI Madiun
Ade Trisnawati, Universitas PGRI Madiun

Editorial Advisory Board



Salfauqi Nurman, Universitas Serambi Mekkah
Rokiy Alfanaar, Universitas Ma Chung
Wahyu Prasetyo Utomo, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Said Ali Akbar, Universitas Serambi Mekkah
Viona Natalia, Universitas Sebelas Maret

Reviewer



Prof. Johnner P. Sitompul, Institut Teknologi Bandung
Prof. Dr. Poedji Loekitowati Hariani, Universitas Sriwijaya
Prof. Zuchra Helwani, Universitas Riau
Prof. Mery Napitupulu, Universitas Riau
Prof. Dr. Chandrawati Cahyani, Universitas Brawijaya
Prof. Dr. Yandi Syukri, Universitas Islam Indonesia
Rizqy Romadhona Ginting, Ph.D, Hiroshima University
Ronny Purwadi, Ph.D, Institut Teknologi Bandung
Mochamad Zakki Fahmi, Ph.D, Universitas Airlangga
Agus Haryanto, Ph.D, Universitas Lampung
Dr. Agus Budiando, Institut Teknologi Adhi Tama Surabaya
Dr. Eng. Dewi Agustina Iryani, Universitas Lampung
Dr.-Ing. Anton Irawan, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa
Dr. rer. nat. Deni Rahmat, Universitas Pancasila
Dr. Joko Waluyo, Universitas Sebelas Maret
Dr. Dian Kresnadipayana, Universitas Setia Budi
Rahmat Basuki, Universitas Pertahanan
Rita Dwi Ratnani, Universitas Wahid Hasyim
Ayu Ratna Permanasari, Politeknik Negeri Bandung
Erni Misran, Universitas Sumatera Utara
Felix Arie Setiawan, Universitas Jember
Iman Mukhaimin, Politeknik Kelautan dan Perikanan Karawang
Cucuk Evi Lusiani, Politeknik Negeri Malang
Ella Kusumastuti, Universitas Negeri Semarang
Ditta Kharisma Yolanda Putri, Universitas Jember
Renova Panjaitan, UPN Veteran Jawa Timur
Mirna Apriani, Politeknik Perkapalan Negeri Surabaya
Sri Budi Harmami, Pusat Penelitian Kimia-LIPI

Volume 4 Nomor 2, 2021

ISSN 2614-8757 (Print), ISSN 2615-2347 (Online)

Available online at: <http://e-journal.unipma.ac.id/index.php/cheesa>

Copyright © 2021

UCAPAN TERIMAKASIH

CHEESA: Chemical Engineering Research Articles

Ucapan terima kasih dan penghargaan yang setinggi – tingginya kami sampaikan kepada para reviewer yang telah menelaah naskah - naskah yang masuk dan memberikan saran kepada kami. Para reviewer yang berkontribusi pada terbitan ini antara lain,

1. Prof. Dr. Poedji Loekitowati Hariani
2. Prof. Johnner P. Sitompul
3. Prof. Mery Napitupulu
4. Mochamad Zaki Fahmi, Ph.D
5. Rahmat Basuki
6. Wahyu Prasetyo Utomo
7. Viona Natalia
8. Cucuk Evi Lusiani

dengan kesungguhan dan kecermatan para reviewer, membantu kami meningkatkan kualitas dan menjaga mutu penulisan pada Jurnal CHEESA: Chemical Engineering Research Articles Volume 4 Nomor 2, Desember 2021.

Terimakasih juga kami sampaikan kepada berbagai pihak yang telah membantu, sehingga edisi ini dapat diterbitkan secara online sesuai waktu yang telah ditentukan.

Redaksi
CHEESA

Volume 4 Nomor 2, 2021

ISSN 2614-8757 (Print), ISSN 2615-2347 (Online)

Available online at: <http://e-journal.unipma.ac.id/index.php/cheesa>

Copyright © 2021

DAFTAR ISI

CHEESA: Chemical Engineering Research Articles

CHEESA merupakan jurnal yang menjadi media kajian kimia dan teknik kimia. Jurnal ini sebagai media publikasi hasil penelitian bidang kimia dan teknik kimia yang ditujukan untuk kalangan akademisi, praktisi dan masyarakat pada umumnya. Tulisan yang dimuat dalam Jurnal CHEESA telah melalui penyuntingan sesuai kaidah yang telah ditetapkan tanpa mengubah naskah asli.

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

Indri Susanti, Rendy Muhamad Iqbal, Rahadian Abdul Rachman, Tri Agusta Pradana

..... 75-81

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

Titan Obby Pangestu, Savira Farizqy Damayanti, Sintha Soraya Santi, Srie Muljani

..... 82-90

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

Khalimatus Sa'diyah, Profiyanti Hermien Suharti, Nanik Hendrawati, Finda Agustin Pratamasari, One Mahardika Rahayu

..... 91-99

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

Puji Rahayu, Sri Agustina, Meta Pramesty, Rosalina, Dwi Kemala Putri

..... 100-108

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the Adsorption of Iron Ions in Batik Waste

Herawati Oktavianty, Sunardi, Elfandra Pramudito Laksono

.....109-118

Volume 4 Nomor 2, 2021

ISSN 2614-8757 (Print), ISSN 2615-2347 (Online) Available
online at: <http://e-journal.unipma.ac.id/index.php/cheesa> Copyright

© 2021

Research Article

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

Aktivitas Fotokatalitik dan Studi Kinetika pada Degradasi Metilen Biru menggunakan Material TiO₂ Doping N berpendukung Zeolit-NaY

Indri Susanti^{1*}, Rendy Muhamad Iqbal², Rahadian Abdul Rachman³, Tri Agusta Pradana³

¹Universitas Islam Lamongan, Department of Science Education, Indonesia.

²Universitas Palangka Raya, Department of Chemistry, Indonesia.

³Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Department of Chemistry, Indonesia.

*correspondence email: indri_susanti@unisla.ac.id

Received: 16/10/2020; Revised: 20/07/2021; Accepted: 28/07/2021;

doi: 10.25273/cheesa.v4i2.7646.75-81

Abstract

Methylene blue is the most widely used dye in the industry and it is difficult to be degraded by the microorganism. This research aims to investigate the photocatalytic activity and effects of contact time on the photocatalytic degradation rate of methylene blue by TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY material based on the kinetic study. The Advanced Oxidative Process (AOP) method was used to degrade methylene blue. Furthermore, the AOP is a degradation process that uses semiconductor material such as TiO₂ or modification catalyst of TiO₂ to be TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY. The degradation of methylene blue with catalyst TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY were tested under UV light for 5, 20, 30, 40, and 50 minutes. The result showed that TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY had an excellent activity for degrading the dye, which reached up to 99% after 20 and 30 minutes reaction, respectively. Also, a kinetic study of methylene blue degradation on TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY showed the kinetic models were according to pseudo-second-order.

Keywords: kinetic; methylene blue; photocatalytic; TiO₂/Zeolite-NaY; TiO₂-N/Zeolite-NaY.

Abstrak

Salah satu zat warna yang banyak digunakan dalam industri adalah metilen biru yang sulit didegradasi oleh mikroorganisme. Penelitian ini bertujuan untuk mengamati pengaruh doping N pada material TiO₂ berpendukung zeolite-NaY dalam degradasi metilen biru. Metode yang digunakan untuk mendegradasi metilen biru adalah Advanced Oxidative Process (AOP). AOP adalah proses degradasi yang menggunakan material semikonduktor seperti TiO₂ atau modifikasi katalis TiO₂ seperti TiO₂/zeolit-NaY dan TiO₂-N/zeolit-NaY. Degradasi metilen biru dengan katalis TiO₂/Zeolit-NaY dan TiO₂-N/Zeolit-NaY diuji menggunakan sinar UV selama 5, 20, 30, 40, dan 50 menit. Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis TiO₂/zeolit-NaY dan TiO₂-N/zeolit-NaY memiliki aktivitas yang sangat baik untuk mendegradasi metilen biru yaitu mencapai 99% setelah 30 menit pada reaksi TiO₂/zeolit-NaY dan 20 menit pada reaksi TiO₂-N/zeolit-NaY. Studi kinetika pada degradasi metilen biru menggunakan TiO₂/Zeolit-NaY dan TiO₂-N/Zeolit-NaY menunjukkan model kinetika yang sesuai yaitu pseudo-second-order.

Kata kunci: fotokatalitik; kinetika; metilen biru; TiO₂/Zeolit-NaY; TiO₂-N/Zeolit-NaY.

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY**1. Introduction**

Dyes are used by textile industries to degrade naturally, although it may cause problems in the environment and contaminate the water ecosystems [1]. The most widely used dye in the industry is methylene blue. Although methylene blue is not strongly hazardous, it causes harmful effects in humans such as increased heart rate, vomiting, shock, Heinz body formation, cyanosis, jaundice, quadriplegia, and tissue necrosis. Moreover, this dye in water affects plant life and is aesthetically unpleasant [2].

However, a promising method for dye removal is adsorption by porous material [3]. This method has limited adsorption capacity, un reusable adsorbent, and may release new waste to the environment. Also, the Advanced Oxidative Process (AOP) method, known as the photocatalytic degradation, is employed and a semiconductor is used to degrade the dye compounds. In addition, the AOP consists of reusable catalyst, low energy and cost, and the use of sunlight at low band gap energy catalyst as a source of irradiation [4][5].

The photocatalytic degradation method was conducted using a semiconductor as a catalyst. Therefore, methylene blue was degraded using TiO₂ as the semiconductor. Titanium Dioxide (TiO₂) is relatively inert compared to other compounds and has a band gap of 3.3 eV [6]. Also, it serves as a photocatalyst with a high photoactivity and stability [7], and the particle size affects the performance for the degradation of dye compound [8]. Furthermore, the photocatalytic activity of TiO₂ can be increased by reducing the band gap of TiO₂ [9]. Ansari *et al.* [8] showed that nitrogen doping on TiO₂ decreases band gap energy

from 3.2 eV to 2.46 eV. Therefore, this research uses TiO₂ with N-doped as material to degrade methylene blue.

According to the study, addition of porous material can increase the photocatalysis of TiO₂. Furthermore, Andari & Wardhani [9] synthesized TiO₂-Zeolite which showed an increase in the photodegradation activity of methylene blue. Setyaningsih *et al.* [10] modified MnO₂ with Zeolite-NaY to obtain MnO₂/Zeolite NaY composite in order to develop catalyst in a catalytic converter system. The zeolite-NaY, with a pore size of 7.4 Å [11], is a promising porous material to combine with TiO₂-N because it is suitable with methylene blue molecules with a length and width of 13.82 Å and 9.5 Å, respectively [12]. The research aims to investigate the application of TiO₂ material with N-doping and zeolite-NaY in degradation of methylene blue.

The effects of contact time on the removal rate of methylene blue are important factors to consider during the photocatalysis process [12]. Behnajady *et al.* [13] investigated the contact time using the kinetic study on photocatalytic degradation of C.I. Acid Yellow 23 by ZnO. Consequently, the kinetic study on the degradation of methylene blue was achieved using pseudo-first-order, pseudo-second-order and diffusion with the equation as stated in a previous research by Kurajica *et al.* [14]. Therefore, the aim of this research is to investigate the photocatalytic activity and effects of contact time on the photocatalytic degradation rate of methylene blue by TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY material based on the kinetic study.

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

2. Materials and Method

2.1 Materials

The materials used in this research include sodium aluminate, sodium silicate, NaOH, TiO₂ anatase, ethanol 98%, and urea.

2.2 Synthesis of TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY material using impregnation method

Firstly, zeolite-NaY was synthesized using the hydrothermal method according to Setyaningsih *et al.* [10]. Furthermore, 1.2 g of TiO₂ or TiO₂-N was mixed with Zeolite-NaY and 10 mL of ethanol 96% was added as a dispersant and stirred for 5 hours. TiO₂/Zeolite-NaY or TiO₂-N/Zeolite-NaY was dried at 120 °C and both materials were calcined at 500 °C for 5 hours. Also, a photodegradation test was carried out at room temperature and at different times.

2.3 Photocatalytic activity test

The photocatalytic activity testing was carried out on the TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY. Subsequently, 50 mg of each catalyst (TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY) was added to 20 mL methylene blue 20 ppm solution in 2 beakers. The methylene blue and catalyst were given a UV radiation (UV lamp 8 W) for 3 hours.

After UV radiation, the performance of TiO₂/zeolite-NaY and TiO₂-N/zeolite-NaY were tested at different times. The photocatalytic activity was tested during 5, 20, 30, 40, and 50 minutes under UV radiation to determine the kinetic reaction. Figure 1 showed the reactor design for the photocatalytic activity test. The concentration of methylene blue was measured using a UV-Vis spectrophotometer with a maximum

wavelength of 664 nm at room temperature (30 °C). However, equation (1) was used to determine the efficiency of methylene blue degradation with C₀ and C_t as the initial concentration and residual concentration, respectively.

$$\text{Efficiency (\%)} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\% \dots\dots(1)$$

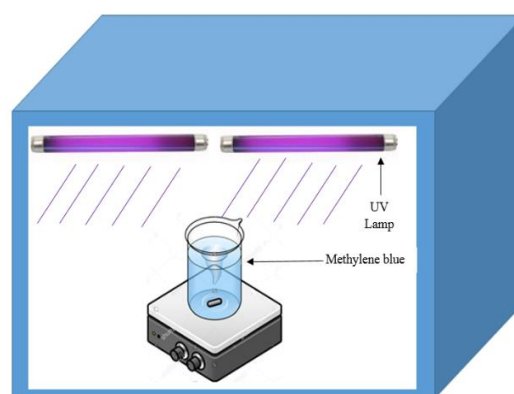


Figure 1. Reactor design of photocatalytic test

3. Result and Discussion

TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY were used as catalysts in methylene blue degradation. The purpose of the research was to observe the effect of contact time in the degradation of methylene blue. Figure 2 represents the degradation efficiency of methylene blue as a function of contact time using TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY. During 5 minutes reaction, TiO₂/zeolite-NaY and TiO₂-N/zeolite-NaY degraded methylene blue upto 96.40 and 97.20%, respectively. Moreover, it is promising in the industrial sector where dye treatment is very fast and cheap. Consequently, after 20 and 30 minutes of reaction for TiO₂-N/Zeolite-NaY and TiO₂/Zeolite-NaY, respectively, up to 99% degradation efficiency was reached. Therefore, the degradation efficiency

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

increases with reaction time until the dye is completely degraded.

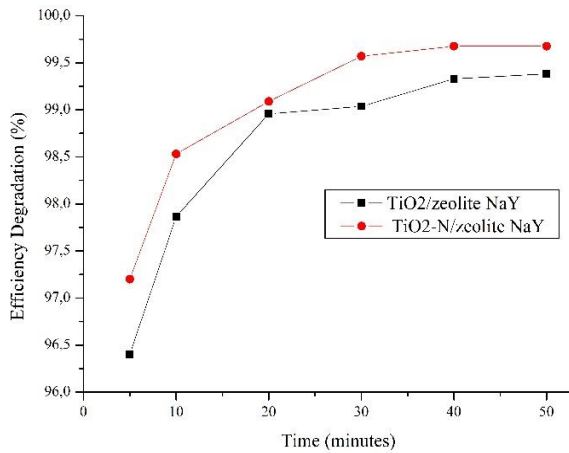


Figure 2. Degradation efficiency of methylene blue at different time

The kinetic study of methylene blue degradation was simulated using the pseudo-first-order with equation (2) [15], pseudo-second-order with equation (3) [16], and intraparticle diffusion with equation (4) [17]. Where, k_f is pseudo-first-order constant (min^{-1}), k_s is pseudo-second-order ($\text{g/mg}\cdot\text{min}$), k_{id} is intraparticle diffusion constant, q_t is the amount of methylene blue taken up by each sample per unit mass (mg/g) at any time t and q_e is the amount of methylene blue at equilibrium (the total removal amount).

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_f t \dots\dots\dots(2)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_s q_e^2} + \frac{t}{q_e} \dots\dots\dots(3)$$

$$q_t = k_{id} t^{1/2} + C \dots\dots\dots(4)$$

Furthermore, the kinetic models of pseudo-first-order, pseudo-second-order, and intraparticle diffusion were shown in Figures 3, 4, and 5, respectively. Based on the kinetics model, methylene blue degradation was suitable with the kinetic

model of pseudo-second-order. In addition, it causes the correlation number (R^2) of pseudo-second-order to be larger than the pseudo-first-order and diffusion intraparticle. Table 1 shows the kinetic parameter from 3 models.

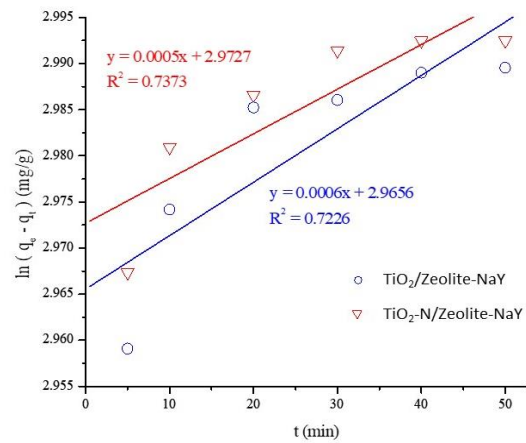


Figure 3. Kinetic model of pseudo-first-order of methylene blue degradation on TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY.

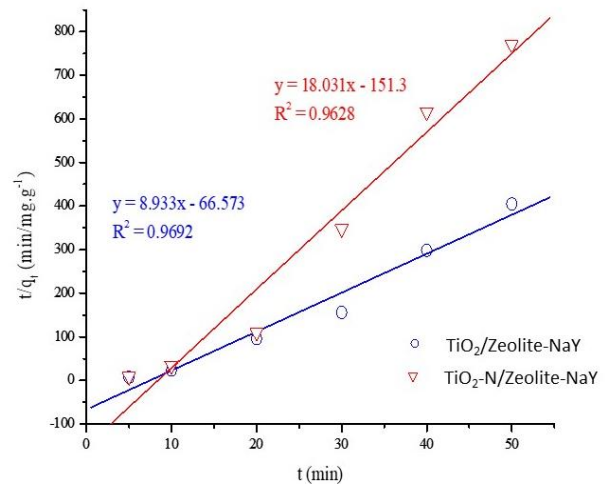


Figure 4. Kinetic model of pseudo-second-order of methylene blue degradation on TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY

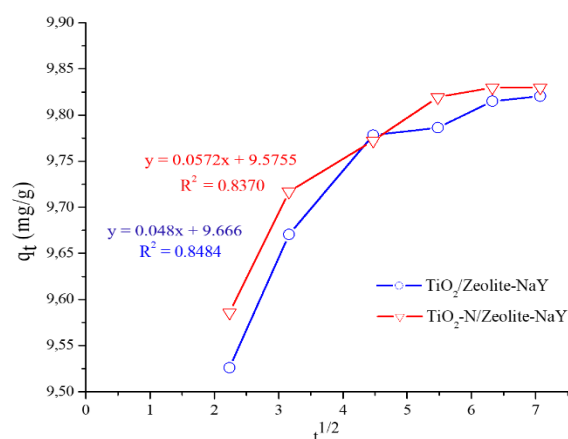
Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

Figure 5. Kinetic model of intraparticle diffusion of methylene blue degradation on TiO₂/Zeolite-NaY and TiO₂-N/Zeolite-NaY.

In pseudo-second-order, the removal rate of methylene blue on TiO₂N/Zeolite-NaY (-0.0066 mg/g.min) was more than TiO₂/Zeolite-NaY (-0.0150 mg/g.min). However, this indicated that the removal of methylene blue was easier on the TiO₂-N/Zeolite-NaY than TiO₂/Zeolite-NaY due to the greater attachment of methylene blue molecules to the surface of TiO₂N/Zeolite-NaY. This lead to a decrease in contact distance and time between methylene blue molecules and the composite material leading to rapid diffusion and progression of the photocatalytic reaction.

In addition, the amount of residual methylene blue after degradation on TiO₂-N/Zeolite-NaY (0.0555 mg/g) was lower than TiO₂/Zeolite-NaY (0.1119 mg/g). This shows that the removal of methylene blue on TiO₂-N/Zeolite-NaY is greater than TiO₂/Zeolite-NaY. Furthermore, it showed that the photocatalytic performance of TiO₂-N/Zeolite-NaY was greater than TiO₂/Zeolite-NaY. The kinetic study also confirms degradation efficiency in Figure 2, which showed that the degradation efficiency of photocatalytic of TiO₂-N/Zeolite-NaY is greater than

TiO₂/Zeolite-NaY. Moreover, this indicates that methylene blue enters TiO₂/Zeolite Na-Y and TiO₂-N/Zeolite-NaY through 2 stages namely external diffusion through TiO₂ and internal diffusion through micropore of zeolite Na-Y.

4. Conclusion

The degradation of methylene blue was tested using UV radiation at different times. Furthermore, the degradation efficiency showed that TiO₂-N/zeolite-NaY was excellent material for the degradation of methylene blue and could degrade the dye up to 99% for 20 minutes of reaction under UV radiation and a longer reaction time would increase the degradation efficiency. Therefore, it can be concluded that impregnation of TiO₂-N/zeolite-NaY increases the surface area of its material and lead to improved performance of the catalyst. The kinetic study of methylene blue degradation was suitable with the kinetic model of pseudo-second-order and it causes the correlation number (R^2) of this order to be larger than pseudo-first-order and intraparticle diffusion.

Acknowledgments

The author is grateful to the Ministry of Research and Technology for research grant under PDP Scheme with contract No 059/SP2H/LT/DRPM/2020.

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY**Table 1.** Kinetic model in methylene blue degradation

Kinetic Model	Parameter		
Pseudo-first-order	k_f	q_e	R²
TiO ₂ / Zeolite-NaY	0.0006	19.4063	0.7226
TiO ₂ -N/ Zeolite-NaY	0.0005	19.5446	0.7373
Pseudo-second-order	k_s	h	q_e
TiO ₂ / Zeolite-NaY	1.1986	-0.0150	0.1119
TiO ₂ -N/ Zeolite-NaY	2.1488	-0.0066	0.0555
Intraparticle Diffusion	k_{id}	C	R²
TiO ₂ / Zeolite-NaY	0,048	9,666	0,8484
TiO ₂ -N/ Zeolite-NaY	0,0572	9,5755	0,8370

Where,

k_f = pseudo-first-order constant (min⁻¹)

q_e = amount of MB at equilibrium (mg/g)

h = initial rate of pseudo-second-order (mg/g.min)

k_s = pseudo-second-order constant (g/mg.min)

k_d = rate of intraparticle diffusion constant (mmol/g.min^{1/2})

C = Intercep to explain of layer boundary thickness

References

- [1] Susanti, I., & Santoso, A. (2020). Efektivitas Lempung Alam Dan Kulit Pisang Sebagai Bahan Komposit Untuk Adsorpsi Metilen Biru. *Barometer*, 5(2), 258–260. doi: 10.35261/barometer.v5i2.3803
- [2] Lellis, B., Fávoro-Polonio, C. Z., Pamphile, J. A., & Polonio, J. C. (2019). Effects of textile dyes on health and the environment and bioremediation potential of living organisms. *Biotechnology Research and Innovation*, 3(2), 275–290. doi: 10.1016/j.biori.2019.09.001
- [3] Yasui, K., Sasaki, K., Ikeda, N., & Kinoshita, H. (2019). Dye adsorbent materials based on porous ceramics from glass fiber-reinforced plastic and clay. *Applied Sciences (Switzerland)*, 9(8). doi: 10.3390/app9081574
- [4] Khalil, M., Iqbal, R. M., Kadja, G. T. M., & Djuhana, D. (2020). Recent Advances on Plasmon-enhanced Titania Nanocatalysts for Photocatalytic Degradation of Organic Dyes. *Journal of the Indonesian Chemical Society*, 3(3), 117. doi: 10.34311/jics.2020.03.3.117
- [5] Hidayat, A. R. P., Andina, V. R., Widiastuti, N., & Iqbal, R. M. (2019). Synthesis, Characterization, and Performance of TiO₂-N as Filler in Polyethersulfone Membranes for Laundry Waste Treatment. *Jurnal Sains dan Seni ITS*, 8(2).
- [6] Wibowo, E. A. P. (2017). Sintesis Komposit N-TiO₂/Bentonit dan Karakterisasi Menggunakan FTIR. *JTT (Jurnal Teknologi Terpadu)*, 5(1), 96. doi: 10.32487/jtt.v5i1.218
- [7] Kalantari, K., Kalbasi, M., Sohrabi, M., & Royae, S. J. (2016). Synthesis and characterization of N-doped TiO₂ nanoparticles and their application in photocatalytic oxidation of dibenzothiophene under visible light. *Ceramics International*, 42(13), 14834–14842. doi: 10.1016/j.ceramint.2016.06.117
- [8] Ansari, S. A., Khan, M. M., Ansari, M. O., & Cho, M. H. (2016). Nitrogen-doped titanium dioxide (N-doped TiO₂) for visible light photocatalysis. *New Journal of Chemistry*, 40(4), 3000–3009. doi: 10.1039/c5nj03478g
- [9] Andarini, N. E., Wardhani, S. (2014). Fotokatalis TiO₂-zeolit untuk degradasi metilen biru. *Chemistry Progress*, 7(1), 9–14. doi: 10.35799/cp.7.1.2014.4848

Photocatalytic Activity and Kinetic Study of Methylene Blue Degradation using N-Doped TiO₂ with Zeolite-NaY

-
- [10] Endang, P. S., Rahadian, A. R., Ulva, T. I. M., Alvin, R. W., Rendy, M. I., & Nurul, W. (2019). The mno₂/zeolite nay catalyzed oxidation of co emission in catalytic converter system. *Materials Science Forum*, 964 MSF, 199–208. doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.964.199
- [11] Susanti, I. (2019). Polysulfone Membrane with Zeolite Filler for CO₂/CH₄ Gas Separation: a Review. *Science Education and Application Journal*, 1(1), 10. doi: 10.30736/seaj.v1i1.93
- [12] Jia, P., Tan, H., Liu, K., & Gao, W. (2018). Removal of methylene blue from aqueous solution by bone char. *Applied Sciences (Switzerland)*, 8(10). doi: 10.3390/app8101903
- [13] Behnajady, M. A., Modirshahla, N., & Hamzavi, R. (2006). Kinetic study on photocatalytic degradation of C.I. Acid Yellow 23 by ZnO photocatalyst. *Journal of Hazardous Materials*, 133(1–3), 226–232. doi: 10.1016/j.jhazmat.2005.10.022
- [14] Kurajica, S., Minga, I., Blazic R., Muzina, K., Tominac, P. (2018). Adsorption and Degradation Kinetics of Methylenen Blue on As-prepared and Calcined Titanate Nanotubes. *Athens Journal of Sciences*, 5(1), 7-22. doi: 10.30958/ajs.5-1-1
- [15] Delavar, M., Asghar Ghoreyshi, A., Jahanshahi, M., Khalili, S., & Nabian, N. (2012). Equilibria and kinetics of natural gas adsorption on multi-walled carbon nanotube material. *RSC Advances*, 2(10), 4490–4497. doi: 10.1039/c2ra01095j
- [16] Che Othman, F. E., Yusof, N., Hasbullah, H., Jaafar, J., Ismail, A. F., Abdullah, N., Wan Salleh, W. N. (2017). Polyacrylonitrile/magnesium oxide-based activated carbon nanofibers with well-developed microporous structure and their adsorption performance for methane. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 51(2016), 281–287. doi: 10.1016/j.jiec.2017.03.014
- [17] Rashidi, N. A., Yusup, S., & Hameed, B. H. (2013). Kinetic studies on carbon dioxide capture using lignocellulosic based activated carbon. *Energy*, 61, 440–446. doi: 10.1016/j.energy.2013.08.050

Research Article

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

Synthesis and Characterization of Calcium Phosphate From Snail Shell Using Precipitation Method

Titan Obby Pangestu¹⁾, Savira Farizqy Damayanti¹⁾, Sintha Soraya Santi^{*1)}, Srie Muljani¹⁾

¹⁾UPN “Veteran” Jawa Timur, Program Studi Teknik Kimia Fakultas Teknik, Indonesia

*correspondence email: sintha.tk@upnjatim.ac.id

Received: 31/03/2021; Revised: 09/08/2021; Accepted: 20/08/2021;

doi: 10.25273/cheesa.v4i2.8931.82-90

Abstrak

Cangkang bekicot memiliki potensi sebagai bahan baku sintesis kalsium fosfat karena kandungan kalsium yang sangat tinggi, yaitu sekitar 99 %. Kalsium fosfat dapat diaplikasikan sebagai biomaterial karena sifatnya yang sama dengan jaringan penyusun tulang. Pada saat ini kebutuhan akan biomaterial sangat tinggi dan telah memberi dampak yang cukup besar terutama dalam bidang kedokteran ortopedi. Penelitian ini bertujuan untuk mengkaji karakteristik kalsium fosfat dengan menggunakan bahan baku cangkang bekicot. Penelitian ini dilakukan dengan metode presipitasi dengan variasi pH dan suhu sintering. Cangkang bekicot di kalsinasi pada suhu 900 °C lalu di campurkan dengan larutan asam fosfat sesuai dengan rasio molar Ca/P 1,67. Pengendapan kalsium fosfat dilakukan saat proses presipitasi dengan penambahan NaOH untuk mengatur pH pada rentang 11 dan 12. Selanjutnya dilakukan proses sintering pada suhu 600, 700, 800, dan 900 °C. Karakterisasi kalsium fosfat yang dihasilkan menggunakan XRF, XRD, dan SEM. Hasil penelitian menunjukkan perolehan hidroksiapatit (Hap) mencapai 100% pada pH 12, dan suhu 600 °C dengan struktur kristal amorf.

Kata kunci: asam fosfat; biomaterial; cangkang bekicot; kalsium fosfat; metode presipitasi

Abstract

Snail shells have a very high calcium content, which is 99.18%. Where, the high enough calcium content in snail shells can be used as a source of calcium to manufacture of calcium phosphate compounds. Calcium phosphate can be applied as a biomaterial because it has the same properties as bone building blocks. At present the need for biomaterials is very high and has had a considerable impact, especially in orthopedic medicine. This study aims to examine calcium phosphate characteristic using snail shells as raw material. This research was conducted by using the precipitation method with variations in pH and sintering temperature. The snail shells were calcined at a temperature of 900 °C and then mixed with a phosphoric acid solution according to the Ca/P molar ratio of 1.67. Precipitation calcium phosphate are made during the precipitation process where there is addition of NaOH to adjust the pH at numbers 11 and 12. Furthermore, the sintering process is carried out at 600 °C, 700 °C, 800 °C, 900 °C. Characterization of the resulting calcium phosphate using XRF, XRD, and SEM. The results showed that the quantity of hydroxyapatite was obtained as much as 100% at pH 12 and 600 °C with amorphous crystals.

Keywords: biomaterials; calcium phosphate; phosphoric acid; precipitation method; snail shells

1. Pendahuluan

Biomaterial merupakan bahan sintesis yang dapat diimplan ke dalam sistem hidup sebagai pengganti fungsi dari jaringan tulang dan gigi. Implan bertujuan untuk mengganti dan memperbaiki bagian organ tubuh yang rusak. Namun pada saat ini tingkat kebutuhan biomaterial sangat tinggi dan memberi dampak yang cukup besar terutama dalam bidang kedokteran ortopedi, misalnya saja untuk perbaikan tulang [1].

Pesatnya kemajuan teknologi saat ini sangat menunjang upaya penelitian dan pengembangan bahan pengganti struktur jaringan keras yang baik, murah dan tidak berbahaya. Salah satu material yang telah menarik banyak perhatian sebagai bahan pengganti pada kerusakan tulang karena kesamaan kristalografi dan kimianya dengan jaringan kapur pada vertebrata adalah biomaterial kalsium fosfat [2].

Keramik biomaterial dapat dibentuk dengan prekursor kalsium dan fosfat [3]. Tulang hewan banyak dimanfaatkan sebagai prekursor kalsium dalam sintesis biomaterial. Prekursor kalsium lainnya dapat didapatkan dari berbagai jenis cangkang yang memiliki kandungan kalsium cukup tinggi [4].

Berdasarkan penelitian Puspita & Cahyaningrum [5] dengan bahan cangkang telur ayam ras, rendemen kalsium fosfat yang dihasilkan yaitu 60,17%. Berdasarkan penelitian Hariyanto & Sari [6] dengan bahan cangkang kerang darah, didapatkan bahwa cangkang kerang darah mengandung komposisi kalsium sebesar 97,7%. Dengan adanya penelitian tersebut, maka kalsium fosfat dapat dibuat dengan bahan dasar alami berupa cangkang. Cangkang bekicot memiliki kandungan kalsium yang sangat tinggi. Berdasarkan penelitian Ramadhani & Abrianto [7]

dengan cangkang bekicot sebagai bahan baku, memiliki kandungan CaO yaitu sebesar 99,18%. Kandungan kalsium yang cukup tinggi pada cangkang bekicot dapat digunakan sebagai sumber kalsium dalam pembuatan senyawa kalsium fosfat.

Berbagai metode telah dikembangkan untuk sintesis kalsium fosfat diantaranya adalah metode presipitasi [8], metode sol-gel, metode hidrotermal, dan metode emulsi beragam [9]. Metode sol-gel, metode hidrotermal, dan metode emulsi beragam memiliki kekurangan yaitu membutuhkan biaya yang lebih banyak karena menggunakan pelarut organik dan prosesnya yang rumit [9]. Metode presipitasi merupakan metode yang banyak digunakan untuk sintesis kalsium fosfat. Keuntungan menggunakan metode ini yaitu tanpa menggunakan pelarut-pelarut organik, biaya pengolahan rendah, mudah dilakukan dan proses pengerjaannya cepat [10].

Belum ada penelitian tentang sintesis kalsium fosfat dengan metode presipitasi menggunakan bahan baku cangkang bekicot. Penelitian ini bertujuan untuk mengkaji karakteristik kalsium fosfat menggunakan bahan baku cangkang bekicot. Penelitian ini dilakukan dengan metode presipitasi dengan variasi pH dan suhu sintering. pH mempengaruhi endapan kalsium fosfat yang dihasilkan serta suhu sintering berpengaruh terhadap morfologi kalsium fosfat [1].

2. Metode Penelitian

2.1 Alat dan bahan

Penelitian dilakukan di Laboratorium Riset, Program Studi Teknik Kimia, UPN "Veteran" Jawa Timur. Bahan baku penelitian meliputi cangkang bekicot yang lolos ayakan 100 mesh sebagai sumber kalsium, H₃PO₄ Bratachem sebagai sumber

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

fosfat, NaOH Bratachem sebagai pengatur pH, dan akuades berfungsi sebagai pelarut.

Alat utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah *magnetic stirrer*, *beaker glass* yang berfungsi sebagai tempat terjadinya proses presipitasi, dan *furnace* yang berfungsi untuk proses terjadinya kalsinasi. Alat penunjang yang digunakan meliputi lumpang, oven, ayakan, neraca analitik, cawan keramik, corong, erlenmeyer, kertas saring, pH meter, dan *aluminium foil*.

2.2 Preparasi sampel

Cangkang bekicot dicuci bersih dan dikeringkan menggunakan oven dengan suhu 110-115 °C. Cangkang yang telah kering kemudian dihancurkan sampai halus dan diayak hingga lolos ukuran 100 mesh. Serbuk cangkang yang telah diayak kemudian dikalsinasi di dalam *furnace* pada suhu 900 °C selama 5 Jam, maka didapat kalsium oksida (CaO). Serbuk cangkang selanjutnya dilakukan analisis XRF (*X-Ray Fluorescence*) untuk mengetahui komposisinya.



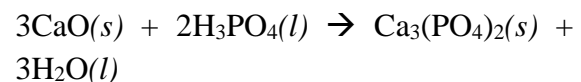
2.3 Preparasi Larutan Kalsium dan Fosfat

Serbuk CaO hasil preparasi ditimbang sesuai perbandingan rasio molar Ca/P 1,67 dengan jumlah CaO adalah 22,0279 gram dan didapatkan konsentrasi 0,5M. Perlakuan yang hampir serupa juga dilakukan dalam membuat larutan fosfat. Larutan H₃PO₄ sebesar 18,83 mL dilarutkan dengan akuades hingga 500 mL sehingga dihasilkan larutan asam fosfat dengan konsentrasi 0,3M.

2.4 Sintesis Kalsium Fosfat

Serbuk cangkang bekicot atau serbuk CaO 0,5M kemudiaan direaksikan dengan

larutan asam fosfat 0,3M, kemudian dilakukan pengadukan dengan *magnetic stirrer* selama 4 jam dengan kecepatan 300 rpm dalam kondisi tertutup menggunakan *aluminium foil*, sehingga terbentuk kalsium fosfat. Kalsium fosfat yang terbentuk kemudian difiltrasi untuk memisahkan padatan dan filtrat. Filtrat yang diperoleh kemudian dilakukan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* selama 3 jam, ditambahkan NaOH untuk mengatur pH pada 11 dan 12, lalu disimpan selama 24 jam pada suhu ruang. Endapan yang terbentuk disaring dengan menggunakan kertas saring dan dikeringkan dalam oven selama ±4 jam pada suhu 110 °C sampai berat konstan. Hasilnya ditimbang dengan menggunakan timbangan analitik.



2.5 Proses Sintering

Kalsium fosfat yang telah ditimbang kemudian dilakukan proses sintering menggunakan *furnance* dengan suhu 600 °C, 700 °C, 800 °C, dan 900 °C selama 3 jam. Setelah proses sintering, didapatkan serbuk kalsium fosfat berwarna putih dan kemudian ditimbang dengan menggunakan neraca analitik.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 Analisis XRF CaO dari cangkang bekicot

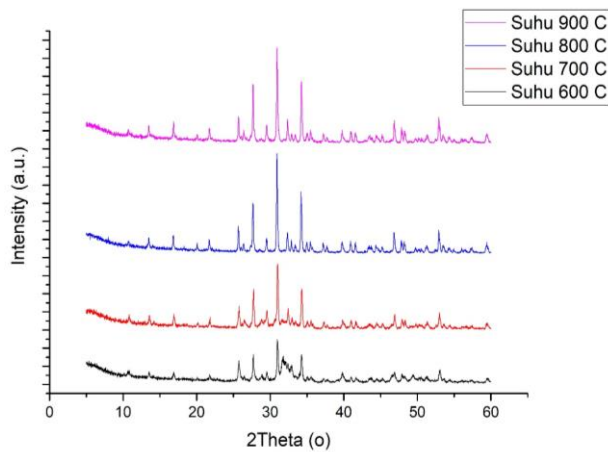
Analisis komposisi serbuk CaO hasil preparasi dari cangkang bekicot dilakukan dengan menggunakan metode XRF. Berdasarkan data hasil analisis yang disajikan pada Tabel 1, kandungan kalsium (Ca) cukup tinggi yaitu 99,10%. Hal ini menunjukkan bahwa cangkang bekicot ini berpotensi untuk digunakan sebagai bahan baku dalam

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

sintesis kalsium fosfat dengan kualitas yang baik.

Tabel 1. Hasil XRF Cangkang Bekicot

No	Komponen	Konsentrasi (%berat)
1	Ca	99,10%
2	S	0,04%
3	Cr	0,05%
4	Fe	0,16%
5	Co	0,11%
6	Cu	0,03%
7	Sr	0,36%
8	Lu	0,15%

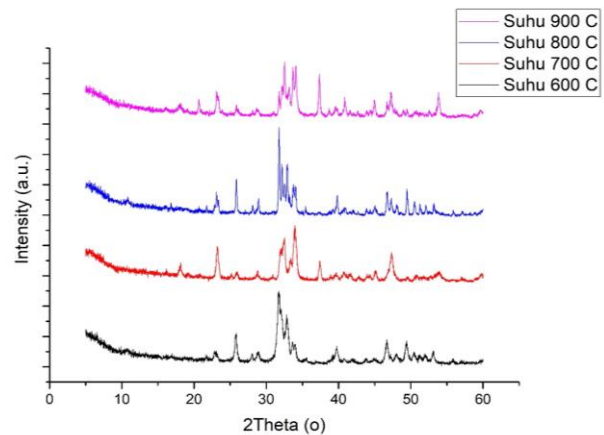
3.2 Analisis XRD Produk Kalsium Fosfat**Gambar 1.** Pola Difraksi XRD Kalsium Fosfat pada pH 11 dengan Variasi Suhu Sintering

Berdasarkan data Gambar 1, hasil yang diperoleh pada pH 11 dengan suhu sintering 600, 700, 800, dan 900 °C didominasi oleh HAp dan β -Tricalcium Phosphate (β -TCP) dengan komposisi yang berbeda. Untuk mengidentifikasi fase yang dihasilkan, penentuan fase dilakukan dengan membandingkan data sampel terhadap JCDPS (*Joint Committee on Powder Diffraction Standards*) untuk HAp dan β -TCP.

Pada (JCPDS no 09-0432), tiga puncak utama dari HAp adalah pada 2θ ; 31,77°, 32,90° dan 32,19° secara berurutan [11]. Keberadaan HAp pada percobaan

dihasilkan pada suhu sintering 600, 800, 900 °C yang ditandai dengan adanya puncak-puncak utama pada sudut difraksi 2θ ; yaitu 31,821°, 32,292°, 32,94°.

Menurut perbandingan (JCDPS no 09-0169) apabila terbentuk β -TCP akan terlihat pada 2θ ; 31,03°. Keberadaan TCP pada percobaan dihasilkan pada suhu sintering 700 dan 800 °C yang ditandai dengan adanya puncak-puncak utama pada sudut difraksi 2θ ; 31,013°.

**Gambar 2.** Pola Difraksi XRD Kalsium Fosfat pada pH 12 dengan Variasi Suhu Sintering

Berdasarkan data Gambar 2, hasil yang diperoleh pada pH 12 dengan suhu sintering 600, 700, 800, dan 900 °C didominasi oleh HAp. Keberadaan HAp pada percobaan dihasilkan pada suhu sintering 600, 700, 800 °C yang ditandai dengan adanya puncak-puncak utama pada sudut difraksi 2θ ; 31,821°, 32,292°, 32,94°.

Tabel 2 menunjukkan komposisi kristal dalam kalsium fosfat dengan variabel pH dan suhu sintering yang berbeda. Pada sintesis kalsium fosfat didapatkan bermacam-macam kristal pada hasil analisis XRD seperti *Calcium Phosphate Hydroxide*, *Calcium Magnesium Phosphate*, *Tricalcium Bis(Phosphate(V)) – Beta*, *Calcium Silicate*, *Sodium Calcium Phosphate*, dan *Calcium Hydrogen Phosphate Hydroxide*.

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi**Tabel 2.** Hasil Analisis XRD Komposisi Kalsium Fosfat

pH	Suhu (°C)	Kristal	Komposisi (%)
11	600	<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i>	35
		<i>Calcium Magnesium Phosphate</i>	65
	700	<i>Calcium Phosphate Deuteriooxide</i>	17
		<i>Tricalcium Bis(Phosphate(V)) – Beta</i>	83
	800	<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i>	60
		<i>Tricalcium Bis(Phosphate(V)) – Beta</i>	40
900	<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i>	29	
	<i>Whitlockite</i>	71	
12	600	<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i>	100
		<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i>	23,2
	700	<i>Calcium Silicate</i>	44,4
		<i>Sodium Calcium Phosphate</i>	25,3
		<i>Coesite</i>	7,1
	800	<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i> $Ca_{10}(PO_4)_6(OH)_2$	39
		<i>Calcium Phosphate Hydroxide</i> $Ca_{3.678}(PO_4)_{2.298}(O_{2.548}H_{4.63})$ <i>Buchwaldite</i>	40
	900	<i>Calcium Sodium Phosphate</i>	21
		<i>Calcium Hydrogen Phosphate Hydroxide</i>	63
			<i>Calcium Hydrogen Phosphate Hydroxide</i>

Dari data karakterisasi XRD, dapat diperkirakan ukuran kristal dengan menggunakan formula Scherrer pada persamaan (1) [12],

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos(\theta)} \dots\dots\dots (1)$$

K = konstanta faktor dengan bentuk kristalit, λ = panjang gelombang sinar-x, θ = Bragg angle, dan β = lebar puncak pada setengah ketinggian maksimum dari ukuran kristalit kecil (radian).

Tabel 3. Ukuran Kristal HAP

Kondisi	Rata - Rata Ukuran Kristal (nm)
pH 11 Suhu 600 °C	52,234
pH 11 Suhu 700 °C	61,951
pH 11 Suhu 800 °C	75,347
pH 11 Suhu 900 °C	86,091
pH 12 Suhu 600 °C	34,518
pH 12 Suhu 700 °C	34,776
pH 12 Suhu 800 °C	67,484
pH 12 Suhu 900 °C	79,933

Berdasarkan Tabel 3 diketahui bahwa suhu sintering berpengaruh terhadap ukuran kristal dari sampel. Pada pH 11, semakin tinggi suhu sintering ukuran

kristal yang didapatkan semakin besar juga, hal ini sama dengan yang terjadi pada pH 12.

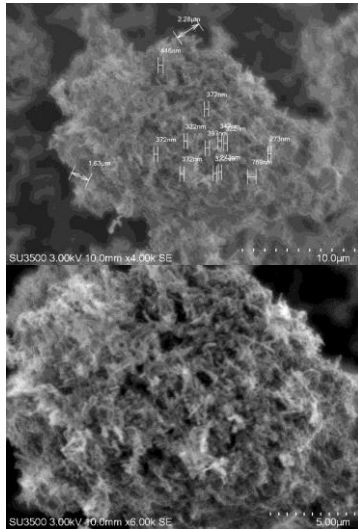
Jika dihubungkan dengan Gambar 1 dan 2, bahwa semakin tinggi suhu sintering maka semakin berdekatan dan runcing pula puncak-puncak XRD yang diperoleh sehingga semakin tinggi kristanilitasnya. Material yang kristanilitasnya tinggi akan memiliki puncak-puncak dengan intensitas yang tinggi. Kristanilitas akan semakin tinggi dengan makin meningkatnya suhu yang di pergunakan untuk proses sintering, hal ini sesuai dengan penelitian Figueiredo *dkk* [13].

3.3 Hasil Karakterisasi Morfologi Kalsium Fosfat Menggunakan SEM

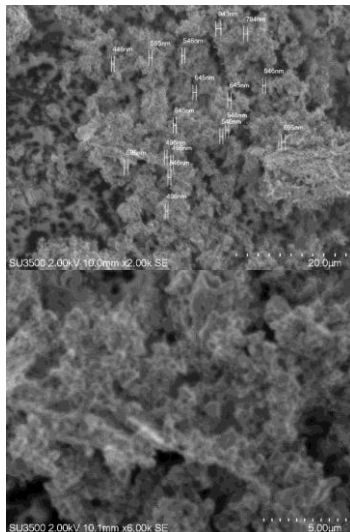
Pada karakterisasi SEM dipilih beberapa kondisi pH dan suhu yang menghasilkan komposisi *Calcium Phosphate Hydroxide* terbesar dan mewakili setiap kristal yang dihasilkan seperti

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

Calcium Phosphate Hydroxide, Calcium Magnesium Phosphate, Tricalcium Bis(Phosphate(V)) – Beta, Calcium Silicate, Sodium Calcium Phosphate, dan Calcium Hydrogen Phosphate Hydroxide. Sehingga pada analisis SEM yang dipilih yaitu pH 11 dengan suhu sintering 700 dan 800 °C sedangkan pH 12 suhu 600, 700, dan 800 °C.



Gambar 3. Hasil Uji SEM pH 11 suhu 700 °C

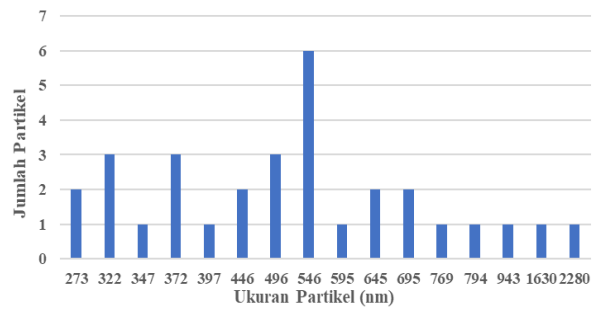


Gambar 4. Hasil Uji SEM pH 11 suhu 800 °C

Berdasarkan hasil uji SEM pada Gambar 3 dan 4, menunjukkan bahwa kristal yang terbentuk pada pH 11 dengan rentang suhu sintering 700-800 °C yaitu berbentuk *spherical* menuju granular.

Bentuk granular merupakan hasil ripening pada nukleisasi dan pertumbuhan kristal kalsium fosfat yang umumnya kristal dengan ukuran lebih besar akan mengintegrasikan kristal yang lebih kecil di sekitarnya. Selain itu, distribusi kristal tidak merata dan menggumpal karena pada proses pengadukan selama sintesis kurang sempurna sehingga mengakibatkan kristal larutan tidak tersebar secara merata [14].

Proses kalsinasi *powder* pada preparasi bahan menggunakan suhu tinggi yaitu 900 °C juga dapat mempengaruhi bentuk kristal karena suhu tinggi dapat meningkatkan aktivitas pertumbuhan kristal sehingga memiliki kecenderungan untuk bergabung membentuk gumpalan. Hasil analisis SEM yang didapatkan sama dengan hasil penelitian yang dilakukan oleh Lazar *dkk.* [15], ketika *powder* dikalsinasi pada suhu tinggi, ukuran kristal menjadi meningkat sehingga terjadi penurunan area permukaan.



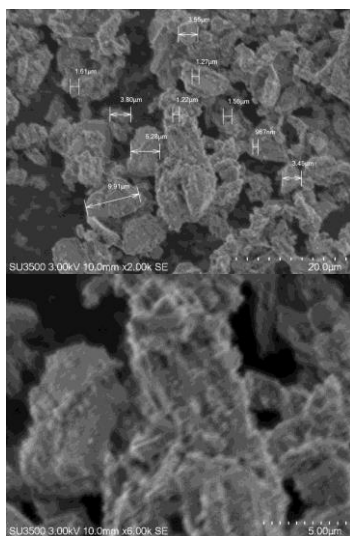
Gambar 5. Ukuran Kristal Hasil Analisis SEM pada pH 11

Dari hasil analisis yang dilakukan, didapatkan ukuran kristal dengan kisaran 273 hingga 2280 nm. Dari Gambar 3, Gambar 4, dan Gambar 5 menjelaskan bahwa adanya ketidakseragaman bentuk kristal dan ukuran kristal dikarenakan adanya transformasi kristal yang terjadi dan juga tidak adanya *pretreatment* pada bahan baku seperti *milling* dan *screening*. Berdasarkan hasil pada Gambar 5

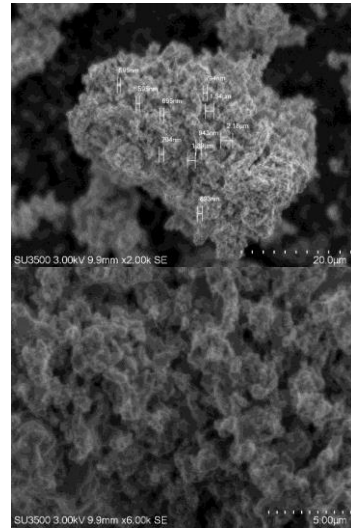
Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

diketahui bahwa ukuran terkecil yaitu 273 nm dan ukuran dengan jumlah terbanyak terdapat pada 546 nm. Sedangkan untuk hasil ukuran rata-rata pada tiap suhu didapatkan 944,11 nm pada suhu 700 °C dan sebesar 1277,75 nm pada suhu 800 °C. Hasil tersebut jauh berbeda dengan analisis sebelumnya dengan menggunakan formula Scherrer XRD yang didapatkan ukuran sebesar 52,234 nm pada suhu 700 °C dan sebesar 61,951 nm pada suhu 800 °C.

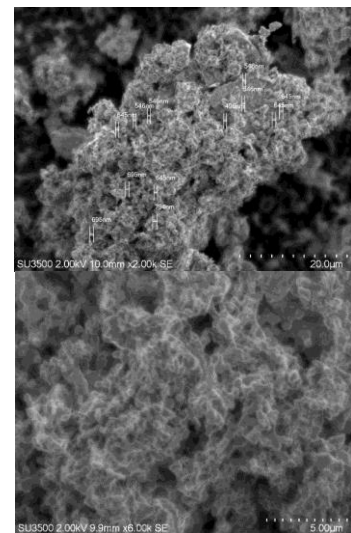
Berdasarkan hasil uji SEM pada Gambar 6, 7 dan 8 menunjukkan bahwa kristal yang terbentuk pada pH 12 dengan rentang suhu sintering 600-800°C yaitu berbentuk *spherical* menuju granular. Bentuknya sama dengan hasil SEM pada pH 11, tetapi lebih memiliki struktur yang aglomerasi dan memiliki rongga yang lebih kecil. Jika dibandingkan hasil SEM dari ketiga suhu, pada suhu 600 °C mempunyai bentuk kristal yang paling sesuai dengan teori yang ada, bentuk kristal HAp adalah hexagonal. Hal ini sesuai dengan hasil penelitian yang dilakukan oleh Haruda *dkk.* [16], semakin tinggi pH semakin tinggi pula kandungan HAp yang didapatkan.



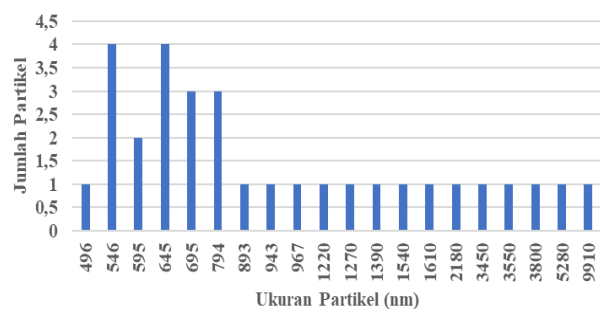
Gambar 6. Hasil Uji SEM pH 12 suhu 600 °C



Gambar 7. Hasil Uji SEM pH 12 suhu 700 °C



Gambar 8. Hasil Uji SEM pH 12 suhu 800 °C



Gambar 9. Ukuran Kristal Hasil Analisis SEM pada pH 12

Dari hasil analisis yang dilakukan seperti terlihat pada Gambar 9, didapatkan ukuran kristal dengan kisaran 496 hingga 9910 nm. Dari Gambar 6 sampai dengan 8

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

menjelaskan bahwa adanya ketidakseragaman bentuk kristal dan ukuran kristal dikarenakan adanya transformasi kristal yang terjadi dan juga tidak adanya *pretreatment* pada bahan baku seperti *milling* dan *screening*. Kristal ukuran terkecil yaitu 496 nm dan ukuran dengan jumlah terbanyak terdapat pada 546 dan 645 nm. Sedangkan untuk hasil ukuran rata-rata pada tiap suhu didapatkan sebesar 3261,7 nm pada suhu 600 °C, sebesar 1302,375 nm pada suhu 700 °C, dan sebesar 1488,8 nm pada suhu 800 °C. Hasil tersebut jauh berbeda dengan analisis sebelumnya dengan menggunakan Scherrer XRD, didapatkan ukuran sebesar 34,518 nm pada suhu 600 °C, sebesar 34,776 nm pada suhu 700 °C, dan sebesar 67,484 nm pada suhu 800 °C.

Perbedaan hasil pengukuran kristal menggunakan XRD dan SEM disebabkan oleh perbedaan metode pengukuran dan juga kemungkinan terdapat perbedaan besaran yang terukur. Persamaan Scherrer menggunakan analisis XRD sehingga memungkinkan mengukur ukuran kristal sebenarnya. Sedangkan menggunakan SEM menggunakan prinsip *scanning electron* hanya memunculkan morfologi permukaan saja.

Berdasarkan hasil analisis SEM pada masing-masing pH menunjukkan bentuk kristal yang hampir sama bentuknya adalah *spherical* menuju granular, hal ini sesuai

dengan hasil penelitian dari Noviyanti *dkk.* [1] metode basah (presipitasi) dapat menghasilkan serbuk kalsium fosfat yang sebagian besar amorf. Selain itu, kalsium fosfat biasanya digunakan untuk biomedis, sehingga bentuk maupun struktur kristal dari kalsium fosfat sendiri menyerupai tulang [17].

4. Kesimpulan

Kalsium fosfat dapat dihasilkan dari bahan yang mengandung unsur CaO salah satunya adalah cangkang dari bekicot dengan bantuan metode presipitasi. Dari hasil sintesis diperoleh kristal *Calcium Phosphate Hydroxide*, *Calcium Magnesium Phosphate*, *Tricalcium Bis(Phosphate(V)) – Beta*, *Calcium Silicate*, *Sodium Calcium Phosphate*, dan *Calcium Hydrogen Phosphate Hydroxide*. Kondisi terbaik untuk mendapatkan kristal *Hydroxyapatite* adalah pH 12 dengan suhu sintering 600 °C. Kondisi terbaik untuk mendapatkan Kristal β -*Tricalcium Phosphate* (β -TCP) adalah pH 11 dengan suhu sintering 700 °C. Karakteristik kalsium fosfat dari cangkang bekicot diperoleh pada masing masing pH dan suhu adalah berbentuk *spherical* menuju granular.

Daftar Rujukan

- [1] Noviyanti, A. R., Haryono, H., Pandu, R., & Eddy, D. R. (2017). Cangkang Telur Ayam sebagai Sumber Kalsium dalam Pembuatan Hidroksiapatit untuk Aplikasi Graft Tulang. *Chimica et Natura Acta*, 5(3), 107. doi: 10.24198/cna.v5.n3.16057
- [2] Agustiyanti, R. D., Azis, Y., & Helwani, Z. (2018). Sintesis Hidroksiapatit dari Precipitated Calcium Carbonate (PCC) Cangkang Telur Ayam Ras melalui Proses Presipitasi. *JOMFTEKNIK*, 5(1)
- [3] Anjarsari, Dahlan, K., Suptijah, P., & Kemala, T. (2016). Sintesis dan Karakterisasi Biokomposit BCP/Kolagen Sebagai Material Perancah Tulang. *Jphpi*, 19(3), 356–361. doi: 10.17844/jphpi.v19i3.15113
- [4] Anchana, C., & Perumal, P. (2016). Synthesis & Application of Hydroxyapatite Bioceramics

Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Fosfat dari Cangkang Bekicot dengan Metode Presipitasi

- from Different Marine Sources. *Journal of Research in Environmental and Earth Science*, 2(11), 7–15.
- [5] Puspita, F. W., & Cahyaningrum, S. E. (2017). Sintesis Dan Karakterisasi Hidroksiapatit Dari Cangkang Telur Ayam Ras (*Gallus Gallus*) Menggunakan Metode Pengendapan Basah. *UNESA Journal of Chemistry*, 6(2), 100–106.
- [6] Hariyanto, A., Sari, V. K., & Pujiastuti, C. (2020). Kinetika Reaksi Pembentukan Kalsium Fosfat dari Asam Fosfat dan Cangkang Kerang Darah. *Journal of Chemical and Process Engineering*, 01(02), 32–38.
- [7] Ramadhani, M. S., Abrianto, D., & Muljani, S. (2019). Karakterisasi Precipitated Calcium Carbonate (PCC) Dari Berbagai Cangkang Dengan Metode Karbonasi Sebagai Biomaterial. *Journal of Chemical and Process Engineering*, 2(1), 13–17. doi: 10.33005/chempro.v2i01.70
- [8] Cahyaningrum, S. E., Herdyastuty, N., Devina, B., & Supangat, D. (2018). Synthesis and Characterization of Hydroxyapatite Powder by Wet Precipitation Method. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 299(1). doi: 10.1088/1757-899X/299/1/012039
- [9] Fadli, A., Reni Yenti, S., Zultiniar, Z., & Fifiyana, R. (2016). Isotherm Study on the Adsorption of Cadmium (II) onto Hydroxyapatite from Sea Shells Synthesized by Low Temperature Hydrothermal Method, *International Conference on Technology, Innovation, and Society (ICTIS)*, 45–52. doi: 10.21063/ictis.2016.1008
- [10] Charlena, Sugeng, B., & Astuti, L. P. (2015). Sintesis Hidroksiapatit dari Cangkang Keong Sawah (*Bellamya javanica*) dengan Metode Simultan Presipitasi Pengadukan Berganda. *Prosiding Semirata*, 10, 284–293.
- [11] Rachman, A., Sofyaningsih, N., & Wahyudi, K. (2019). Karakteristik Mineralogi Material Biokeramik Jenis Kalsium Fosfat Dari Cangkang Kerang Simpang. *Jurnal Keramik dan Gelas Indonesia*, 27(2), 77. doi: 10.32537/jkgi.v27i2.3952
- [12] Ratnasari, A., Dengan, D., & Dan, M. (2020). Karakterisasi X-Ray Diffraction Kristal Hidroksiapatit Dimodifikasi Dengan MgCO₃ dan CaCO₃, 103–110.
- [13] Figueiredo, M., Fernando, A., Martins, G., Freitas, J., Judas, F., & Figueiredo, H. (2010). Effect of the calcination temperature on the composition and microstructure of hydroxyapatite derived from human and animal bone. *Ceramics International*, 36(8), 2383–2393. doi: 10.1016/j.ceramint.2010.07.016
- [14] Putri, V. D. (2016). Pengaruh Perbandingan Molar Ca/P Dalam Pembuatan Lapisan Tipis Kalsium Fosfat Dari Prekursor Ca(NO₃)₂·4H₂O Melalui Metode Sol-Gel. *Jurnal Katalisator*, 1(2), 1–11. doi: 10.22216/jk.v1i2.1741
- [15] Lazar, D. R. R., Cunha, S. M., Ussui, V., Fancio, E., De Lima, N. B., & Bressiani, A. H. A. (2006). Effect of calcination conditions on phase formation of calcium phosphates ceramics synthesized by homogeneous precipitation. *Materials Science Forum*, 530–531, 612–617. doi: 10.4028/www.scientific.net/msf.530-531.612
- [16] Haruda, M. S., Fadli, A., & Yenti, S. R. (2016). Pengaruh pH dan Waktu Reaksi Pada Sintesis Hidroksiapatit Dari Tulang Sapi Dengan Metode Presipitasi. *JOMFTEKNIK*, 3(1).
- [17] Ramay, H. R., & Zhang, M. (2003). Preparation of porous hydroxyapatite scaffolds by combination of the gel-casting and polymer sponge methods. *Biomaterials*, 24(19), 3293–3302. doi: 10.1016/S0142-9612(03)00171-6

Research Article

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

Utilization of Wood Sawdust as Activated Carbon through Pyrolysis and Chemical Activation Process

Khalimatus Sa'diyah^{1*}, Profiyanti Hermien Suharti¹, Nanik Hendrawati¹, Finda Agustin Pratamasari¹, One Mahardika Rahayu¹

¹Politeknik Negeri Malang, Teknik Kimia, Indonesia

*correspondence email: khalimatus22@gmail.com

Received: 04/02/2021; Revised: 29/09/2021; Accepted: 29/09/2021;

doi: 10.25273/cheesa.v4i2.8589.91-99

Abstrak

Ketersediaan limbah serbuk gergaji kayu sangat potensial diolah menjadi karbon aktif karena mengandung selulosa dan lignin yang menyebabkan serbuk gergaji kayu dapat mengikat ion logam berat. Pemanfaatan karbon aktif banyak digunakan di berbagai industri, diantaranya sebagai penyerap zat pencemar dan logam berat. Penelitian ini membahas tentang pembuatan dan pemanfaatan serbuk gergaji kayu sebagai karbon aktif (adsorben) melalui pirolisis dan aktivasi kimia. Tujuannya adalah untuk mengetahui pengaruh suhu pirolisis terhadap kualitas karbon aktif yang dihasilkan. Karbon aktif dibuat menggunakan serbuk gergaji kayu yang didehidrasi di bawah sinar matahari. Proses karbonisasi dilakukan dengan metode pirolisis pada suhu 200 °C, 225 °C, 250 °C, 275 °C dan 300 °C selama 1 jam. Hasil proses pirolisis selanjutnya diaktivasi menggunakan aktivator basa kuat (NaOH) dengan konsentrasi 1 N dan waktu aktivasi 3 jam. Berdasarkan hasil penelitian, suhu pirolisis yang menghasilkan kualitas karbon aktif mendekati Standar Industri Indonesia (SII) 0258-88 adalah pada suhu 275 °C. Kualitas karbon aktif yang dihasilkan memiliki kadar air 3 %, kadar abu 10,2 %, kadar *volatile matter* 23 %, dan kadar *fixed carbon* 63,7 %.

Kata kunci: aktivasi; karbonisasi; karbon aktif; kayu; pirolisis

Abstract

The availability of wood sawdust waste has the potential to be processed into activated carbon because it contains cellulose and lignin which causes wood sawdust to bind heavy metal ions. Utilization of activated carbon is widely used in various industries, including as an absorbent of pollutants and heavy metals. This research is about the production and utilization of sawdust as activated carbon (adsorbent) through pyrolysis and chemical activation. The aim is to determine the effect of pyrolysis temperature on the quality of the activated carbon produced. Activated carbon is made using wood sawdust which is dehydrated in the sun. The carbonization process was performed using pyrolysis method at temperatures of 200°C, 225°C, 250°C, 275°C and 300°C for 1 hour. Then it was activated using a strong base activator (NaOH) with an activator concentration of 1 N and an activation time of 3 hours. Based on the obtained results, the pyrolysis temperature which produces the quality of activated carbon closed to Standar Industri Indonesia (SII) 0258-88 is 275°C. The quality of the produced activated carbon has a moisture content of 3%, ash content of 10.2%, volatile matter content of 23%, and fixed carbon content of 63.7%.

Keywords: activation; activated carbon; carbonization; pyrolysis, wood

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

1. Pendahuluan

Limbah serbuk gergaji kayu merupakan produk samping dari industri kayu. Limbah tersebut jumlahnya sangat banyak di Indonesia, bisa mencapai 0,78 juta m³/tahun atau sekitar 15 - 20% [1]. Sebagian besar industri belum memanfaatkan dan mengelola limbah tersebut dengan baik. Sejauh ini limbah serbuk gergaji kayu diolah dengan cara dibakar atau dibuang langsung ke badan sungai. Hal ini menimbulkan masalah pencemaran lingkungan. Berbagai kajian dan penelitian terus dikembangkan untuk mengolah limbah serbuk gergaji kayu menjadi produk dengan nilai ekonomi yang lebih tinggi. Salah satunya adalah dengan mengubah serbuk gergaji kayu menjadi karbon aktif. Serbuk gergaji kayu mengandung lignin, selulosa, dan hemiselulosa sehingga berpotensi untuk dijadikan karbon aktif.

Manfaat karbon aktif dapat dijadikan sebagai adsorben untuk menyerap kadar logam dan iodium. Karbon aktif ini dapat digunakan sebagai penyerap logam berat, seperti Ni, Zn, Cu, Fe, Co, Mn dan lain sebagainya [2]. Keberadaan logam berat di lingkungan, khususnya di perairan dapat disebabkan oleh peningkatan industri, sampah pemukiman, pemupukan dan penggunaan pestisida yang limbahnya dibuang ke perairan tanpa adanya proses adsorpsi yang memadai, sehingga mengakibatkan permasalahan serius bagi lingkungan hidup.

Penelitian tentang limbah serbuk gergaji kayu yang digunakan sebagai karbon aktif pernah dilakukan, yaitu diproses secara fisika dan kimia, menghasilkan mutu karbon aktif yang memenuhi standar Indonesia dan Amerika Serikat [3]. Secara umum pembuatan karbon aktif terdiri dari 3 tahap, yaitu

pengeringan, karbonasi dan aktivasi. Proses pengeringan bahan baku biasanya dilakukan di bawah sinar matahari atau bisa dikeringkan menggunakan oven untuk mempercepat waktu *pre-treatment*. Proses karbonasi bertujuan untuk membentuk arang. Karbonasi biasanya dilakukan melalui proses pemanasan di dalam *furnace* dengan suhu di atas 400 °C atau pembakaran secara langsung. Proses aktivasi bertujuan untuk memperbaiki kualitas karbon aktif serta membersihkan pori-pori karbon aktif dari pengotor sehingga memiliki daya serap yang tinggi [4].

Banyak upaya yang dilakukan untuk menekan biaya produksi karbon aktif, salah satunya adalah karbonasi melalui proses pirolisis dan aktivasi kimia basa. Pirolisis adalah proses pemanasan tanpa udara luar atau O₂. Untuk memastikan bahwa proses tersebut tidak melibatkan udara atau O₂ maka dialirkan gas inert ke dalam reaktor selama proses pemanasan. Adanya O₂ dalam reaktor dapat membentuk reaksi pembakaran yang menghasilkan gas CO₂, H₂O, dan abu. Pada proses pirolisis, senyawa akan mulai terdekomposisi menjadi karbon pada suhu 200-300 °C [5]. Di dalam proses tersebut telah terjadi proses aktivasi fisik yang menyebabkan perubahan fisik pada permukaan karbon, melalui penghilangan hidrokarbon dari permukaan. Untuk meningkatkan kemampuan adsorpsi karbon aktif perlu dilakukan aktivasi secara kimia. Seperti pada proses aktivasi bentonit sebagai bahan *bleaching* minyak kelapa, aktivator kimia yang digunakan adalah H₂SO₄ dan NaOH. Asam berfungsi untuk meningkatkan luas permukaan dan memodifikasi struktur bentonit sedangkan basa berfungsi bahan penetral [6]. Dalam penelitian ini, aktivator yang digunakan

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

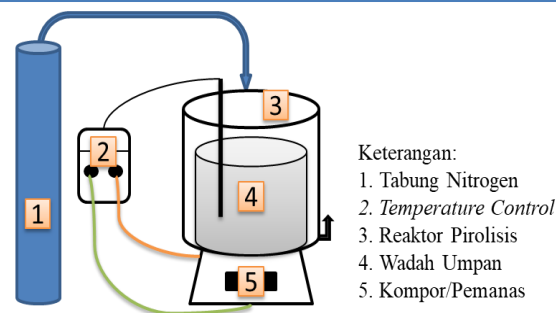
adalah NaOH 1 N. NaOH merupakan basa kuat yang dapat digunakan sebagai media penyerap logam berat setelah selulosa teraktivasi. Proses aktivasi menggunakan basa bisa membuat permukaan karbon aktif menjadi transparan atau tipis. Sehingga permukaan karbon semakin luas dan berpori, berkisar antara 400-1400 m²/gram [7].

Pada penelitian ini akan dipelajari pemanfaatan serbuk gergaji kayu menjadi karbon aktif melalui proses pirolisis dan aktivasi kimia basa. Tujuannya adalah mengetahui pengaruh suhu proses pirolisis terhadap kualitas karbon aktif yang dihasilkan. Pada proses pirolisis, suhu operasi yang digunakan adalah 200 °C, 225 °C, 250 °C, 275 °C, 300 °C dengan waktu tinggal 1 jam. Selanjutnya karbon aktif akan diaktivasi secara kimia basa menggunakan NaOH 1 N. Kualitas karbon aktif akan dilihat dari analisis kadar air, kadar abu, kadar yang menguap (*Volatile Matter*), dan kadar *Fixed Carbon*.

2. Metode Penelitian

2.1. Alat dan Bahan

Bahan baku yang digunakan adalah serbuk gergaji dari berbagai jenis kayu yang sudah bercampur yang berasal dari limbah industri mebel dan NaOH 1 N sebagai aktivator. Peralatan yang digunakan adalah reaktor pirolisis, alat gelas dan pH meter. Reaktor pirolisis yang digunakan adalah reaktor *semi-batch stainless steel unstirred* yang beroperasi pada tekanan 1 atmosfer. Alat gelas dan pH meter digunakan untuk analisis sampel dan produk. Rangkaian alat dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Rangkaian Alat Pirolisis

2.2. Prosedur Penelitian

Kegiatan utama penelitian adalah pirolisis serbuk gergaji kayu untuk mendapatkan adsorben (karbon aktif) yang sesuai SII 0258-88. Penelitian yang dilakukan adalah secara eksperimental meliputi pembuatan karbon aktif dengan proses pirolisis, aktivasi kimia dan analisis produk. Bahan baku berupa serbuk gergaji kayu dikeringkan di bawah sinar matahari selama 1-3 hari. 1 kg serbuk gergaji yang telah kering selanjutnya dilakukan proses pirolisis dengan variasi suhu operasi 200 °C, 225 °C, 250 °C, 275 °C, 300 °C.

Pada proses pirolisis dihasilkan karbon yang selanjutnya diaktivasi menggunakan aktivator kimia basa. 150 gram karbon hasil pirolisis direndam di dalam 1 liter aktivator basa yaitu larutan NaOH 1 N selama 3 jam. Selanjutnya karbon hasil perendaman dicuci dengan akuades sampai mendapat pH netral. Padatan karbon dipisahkan menggunakan pompa *vacuum* dan dikeringkan pada suhu 110 °C selama 24 jam. Karbon yang sudah teraktivasi siap digunakan dan disimpan di dalam desikator.

2.3. Analisis Kuantitas dan Kualitas Karbon Aktif

Analisis parameter kuantitas dan kualitas karbon aktif yang dilakukan meliputi perhitungan *yield*, kadar air, kadar

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

abu, kadar *volatile matter*, dan kadar *fixed carbon*.

- a. Persamaan (1) digunakan untuk menghitung *yield*.

$$Yield = \frac{\text{massa/volum produk}}{\text{massa/volum umpan}} \times 100\% \dots\dots\dots(1)$$

- b. Pengujian kadar air

Sampel adsorben ditimbang dalam cawan sebanyak 1 gram dan dipanaskan di dalam oven dengan suhu 110 °C selama 1 jam. Kemudian sampel didinginkan di dalam desikator selama 15 menit dan ditimbang. Kadar air dihitung dengan persamaan (2).

$$\text{Kadar air (\%)} = \frac{m2 - m3}{m2 - m1} \times 100\% \dots\dots\dots(2)$$

Keterangan :

- m1 = berat cawan kosong (gram)
- m2 = berat cawan + isi sebelum di oven (gram)
- m3 = berat cawan + isi setelah di oven (gram)

- c. Pengujian kadar abu

Sampel adsorben ditimbang dalam cawan sebanyak 1 gram dan dipanaskan di dalam *furnace* pada suhu 815 °C sampai terbentuk abu. Kemudian sampel didinginkan di dalam desikator selama 15 menit dan dianalisis kadar abunya dengan persamaan (3).

$$\text{Kadar abu (\%)} = \frac{m5}{m4} \times 100\% \dots\dots\dots(3)$$

Keterangan :

- m4 = berat sampel mula-mula (gram)
- m5 = berat abu yang terbentuk (gram)

- d. Pengujian kadar *volatile matter*

Sampel adsorben ditimbang dalam cawan sebanyak 1 gram dan dipanaskan di dalam *furnace* pada suhu 950 °C selama 7 menit. Kemudian sampel didinginkan dalam desikator selama 15 menit dan dianalisis kadar *volatile matter* dengan persamaan (4).

$$\text{Kadar volatile matter (\%)} = \frac{m2 - m3}{m2 - m1} \times 100\% \dots\dots\dots(4)$$

Keterangan :

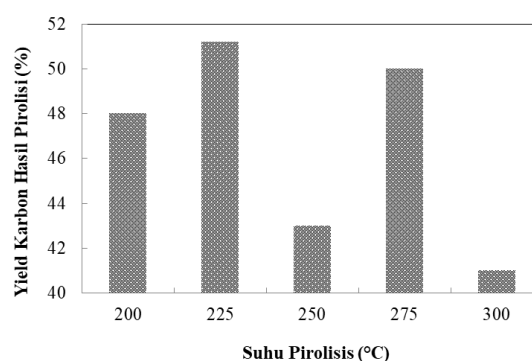
- m1 = berat cawan kosong (gram)
- m2 = berat cawan + isi sebelum di *furnace* (gram)
- m3 = berat cawan + isi setelah di *furnace* (gram)

- e. Perhitungan kadar *fixed carbon* menggunakan persamaan (5)

$$\% \text{ Fixed Carbon} = \left(\frac{\text{kadar air} + \text{kadar abu}}{\text{kadar volatile matter}} \right) \times 100\% \dots\dots\dots(5)$$

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Pengaruh Suhu Terhadap Yield Karbon Aktif



Gambar 2. Pengaruh Suhu Terhadap Yield Karbon Hasil Pirolisis

Gambar 2 menunjukkan bahwa *yield* karbon hasil pirolisis pada suhu 200–300 °C berkisar 41–51,2 %. *Yield* karbon paling besar pada suhu 225 °C yaitu 51,2%, sedangkan *yield* terendah pada suhu 300 °C yaitu 41%. Semakin tinggi suhu pirolisis menyebabkan partikel umpan menguap sehingga padatan yang tertinggal akan berkurang [8]. *Yield* karbon yang dihasilkan pada suhu tertinggi, 300 °C adalah rendah dan sebaliknya pada suhu terendah, 200 °C *yield*nya >45%. Pada suhu 275 °C, terjadi perbedaan %*yield* yang tinggi dibanding dengan *yield* pada suhu 250 °C dan 300 °C. Seperti pada proses karbonasi pelepah aren suhu 450 °C dan 500 °C terjadi penyimpangan yaitu jumlah karbon (padatan) mengalami kenaikan seiring bertambahnya suhu [9]. Ini dapat disebabkan beberapa hal, baik

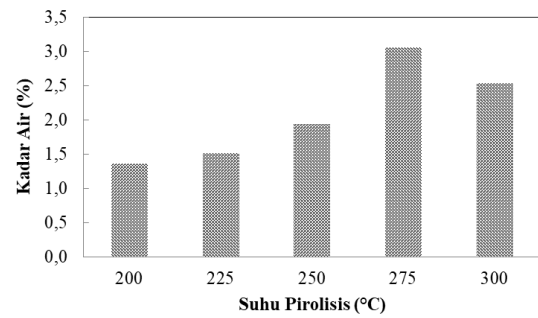
Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

dari segi persiapan bahan baku maupun kecepatan pemanasan [10]. Hal tersebut berbeda dengan teori yang menyatakan bahwa semakin meningkatnya suhu pirolisis, maka *yield* karbon aktif yang dihasilkan semakin menurun. Suhu pirolisis berbanding terbalik dengan *yield*. Pada suhu pirolisis yang lebih tinggi, pengurangan zat *volatile* menjadi lebih besar sehingga hasil padatan/karbon yang diperoleh lebih sedikit [11]. Selain itu, peningkatan suhu pirolisis juga menyebabkan gas yang terkandung di dalam umpan mengalami pelepasan sehingga karbon kehilangan sebagian massanya [12].

Pada proses *slow pyrolysis*, pirolisis dengan suhu <400 °C, akan terjadi penyusutan massa umpan. Hal ini dikarenakan senyawa *non-combustible* seperti CO₂, senyawa organik, dan uap air, terurai pada suhu antara 100-200 °C. Di atas suhu 200-280 °C, terjadi dekomposisi struktur komponen bahan organik menjadi gas dengan massa molekul yang rendah. Semakin tinggi suhu proses pirolisis maka proses penguapan senyawa yang terkandung di dalam umpan juga semakin besar. Sehingga umpan akan kehilangan sebagian besar massanya dan terjadi penyusutan massa [13].

3.2. Uji Kadar Air

Tujuan dari pengujian kadar air adalah untuk mengetahui kandungan air yang terkandung pada karbon aktif setelah melalui proses aktivasi dan mengetahui sifat higroskopis karbon aktif. Karbon aktif mempunyai sifat afinitas yang besar terhadap air [14]. Hasil uji kadar air pada karbon aktif dapat dilihat pada Gambar 3.



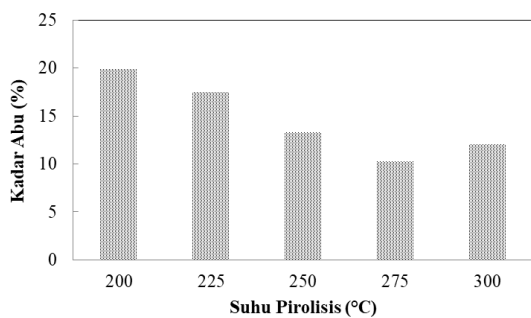
Gambar 3. Pengaruh Suhu Pirolisis terhadap Kadar Air dari Karbon Aktif

Gambar 3 menunjukkan kadar air pada karbon aktif hasil pirolisis sebesar 1,4-3%. Hal ini sesuai dengan SII 0258-88, yang menyatakan bahwa kadar air dari karbon aktif tidak lebih dari 15%. Kadar air pada karbon aktif cenderung meningkat berdasarkan kenaikan suhu pirolisis antara 200-300 °C. Peningkatan kadar air ini disebabkan kemampuan karbon aktif dalam menyerap molekul air dari lingkungan yang semakin tinggi. Karbon teraktivasi memiliki sisi aktif berupa 6 atom karbon yang mampu mengikat molekul air sehingga sifat higroskopis karbon aktif semakin besar [1]. Pada proses aktivasi terbentuk pori-pori baru karena adanya pengikisan atom karbon melalui oksidasi. Proses oksidasi tersebut melibatkan ion H⁺ yang bereaksi dengan ion OH⁻ pada aktivator basa [6]. Pada aktivasi secara kimia, kadar air pada karbon aktif sangat dipengaruhi oleh sifat higroskopis dari aktivator. Apabila aktivator dapat mengikat molekul air yang ada pada permukaan karbon aktif maka jumlah pori-pori pada karbon aktif akan semakin bertambah. Hal ini menyebabkan luas permukaan sisi aktif dari karbon semakin besar dan mampu meningkatkan daya serap karbon aktif tersebut. Karbon aktif yang memiliki kualitas baik adalah karbon aktif yang memiliki kemampuan tinggi dalam menyerap polutan [15].

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

3.3. Uji Kadar Abu

Kadar abu adalah nilai pengujian oksida logam dalam arang yang terdiri dari mineral yang tidak menguap (*non-volatile*) hasil dari proses pemanasan. Kandungan abu sangat mempengaruhi kualitas karbon aktif. Keberadaan abu yang berlebihan pada permukaan karbon dapat mengurangi sisi aktif dan daya serap karbon aktif. Abu tersebut dapat menyumbat pori-pori pada permukaan karbon aktif sehingga luas permukaan aktif menjadi kecil. Hal tersebut bisa mengurangi kualitas karbon aktif [14]. Data hasil penelitian analisis kadar abu dapat dilihat pada Gambar 4.



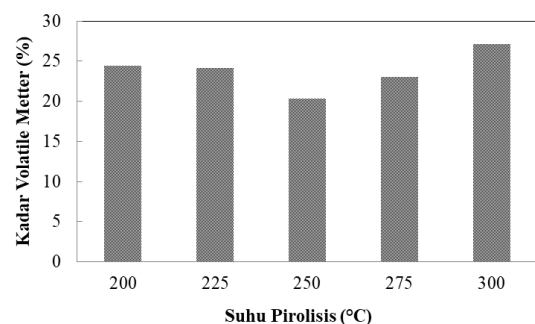
Gambar 4. Pengaruh Suhu Pirolisis terhadap Kadar Abu dari Karbon Aktif

Kadar abu pada karbon aktif yang dihasilkan memiliki nilai berkisar antara 10,2-19,8%. Menurut SII 0258-88 dinyatakan bahwa kadar abu dari karbon aktif tidak lebih dari 10%. Sehingga hasil dari penelitian ini belum sesuai dengan standar SII 0258-88. Hal ini dikarenakan pada proses pirolisis ada sebagian material biomassa yang berubah menjadi abu sehingga abu tersebut mempengaruhi kualitas karbon. Semakin tinggi kadar abu pada karbon aktif maka daya serap karbon aktif tersebut akan semakin turun. Hal ini disebabkan pori arang aktif tersumbat oleh mineral-mineral logam seperti K, Na, Ca dan Mg [16].

Keberadaan abu pada pori karbon aktif merupakan hasil reaksi oksidasi antara atom C (padatan pada arang) dengan uap air (H₂O). Selain itu, diduga proses pemanasan dan aktivasi menghasilkan produk samping berupa partikel halus dari dekomposisi senyawa organik atau mineral. Kandungan abu cenderung tinggi pada suhu 200-250°C dan relatif stabil pada suhu lebih tinggi [17].

3.4. Uji Kadar *Volatile Matter*

Pengujian ini bertujuan untuk mengukur kandungan senyawa yang belum menguap pada saat proses aktivasi tetapi menguap pada suhu 950 °C. Hasil analisis kadar *volatile matter* dapat dilihat pada Gambar 5.



Gambar 5. Pengaruh Suhu Pirolisis terhadap Kadar *Volatile Matter* dari Karbon Aktif

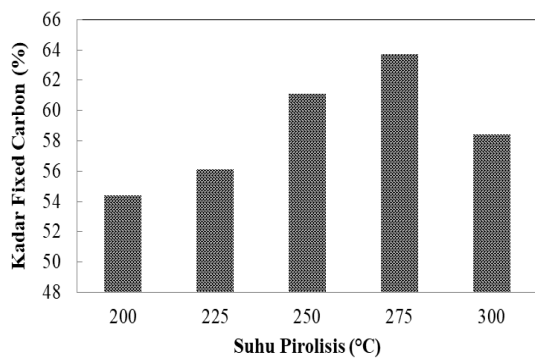
Kadar zat mudah menguap (*volatile matter*) pada karbon aktif yang dihasilkan memiliki nilai berkisar antara 20,3-27,1%. Pada Gambar 5, terlihat kadar *volatile matter* pada suhu 300 °C yaitu sebesar 27,1%, melebihi persyaratan Standar Indonesia SII 0258-88 yang menyebutkan kadar *volatile matter* dari karbon aktif tidak lebih dari 25%. Nilai *volatile matter* pada karbon aktif menunjukkan bahwa permukaan karbon aktif masih mengandung senyawa nonkarbon. Keberadaan senyawa nonkarbon tersebut dapat menyumbat pori-pori dan

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

menurunkan daya serap karbon aktif [18]. Semakin besar nilai *volatile matter* maka senyawa nonkarbon yang menutupi pori-pori karbon aktif juga semakin besar. Hal tersebut menyebabkan daya serap serta luas permukaan karbon aktif semakin kecil dan begitu pula sebaliknya.

3.5. Kadar *Fixed Carbon*

Kadar *fixed carbon* (karbon terikat) adalah kandungan karbon yang terikat di dalam karbon aktif selain kadar *volatile matter*, kadar abu dan kadar air. Analisis kadar *fixed carbon* terikat bertujuan untuk mengetahui jumlah karbon yang tersisa setelah proses karbonisasi. *Fixed carbon* merupakan nilai karbon padatan yang menunjukkan nilai daya serap karbon. Semakin tinggi nilai *fixed carbon* menunjukkan daya serap karbon aktif yang sebanding [19]. Hasil analisis kadar *fixed carbon* pada karbon aktif dapat dilihat pada Gambar 6.



Gambar 6. Hubungan Suhu Pirolisis dengan *Fixed Carbon*

Pada penelitian ini didapatkan hasil *fixed carbon* berkisar antara 54,4-64,5%. Nilai kadar karbon terikat dipengaruhi oleh nilai kadar abu, zat mudah menguap, selulosa dan lignin. Selulosa dan lignin yg terdandung dalam serbuk gergaji kayu terdegradasi menjadi atom karbon [20]. Semakin rendahnya kadar *fixed carbon* menunjukkan banyak atom karbon yang

bereaksi dengan uap air menghasilkan gas CO dan CO₂. Pada suhu 200-275°C, senyawa di dalam serbuk gergaji kayu cenderung terdekomposisi menjadi karbon, tetapi pada suhu pirolisis yang tinggi menunjukkan bahwa unsur karbon cenderung berkurang. Hal ini disebabkan pada suhu tinggi, unsur non karbon mudah terdegradasi atau teroksidasi menjadi unsur yang lebih kecil. Kadar karbon yang tinggi dapat diperoleh dari proses pemanasan atau karbonasi yang sempurna [21].

Hasil analisis karbon aktif dari serbuk gergaji kayu pada berbagai suhu pirolisis dibandingkan SII 0258-88 dapat dilihat pada Tabel 1. Berdasarkan hasil tersebut diketahui bahwa karbon aktif dari serbuk gergaji kayu yang mendekati syarat mutu karbon aktif yaitu karbon aktif yang dihasilkan pada proses pirolisis suhu 275 °C.

Tabel 1. Karakteristik Karbon Aktif

Kriteria	Kadar			
	Air (%)	Abu (%)	<i>Volatile Matter</i> (%)	<i>Fixed Carbon</i> (%)
200 °C	1,5	19,8	24,4	54,4
225 °C	1,4	17,5	24,1	56,1
250 °C	1,9	13,3	20,3	61,1
275 °C	1,4	10,2	23,0	63,7
300 °C	3,0	12,0	27,1	58,4
SII 0258-88	<15	<10	<25	-

4. Kesimpulan

Dari hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa *yield* karbon aktif dari serbuk gergaji kayu paling tinggi diperoleh pada karbon aktif hasil pirolisis suhu 225 °C yaitu 51,2%. Kualitas karbon aktif yang mendekati syarat mutu karbon aktif SII 0258-88 adalah karbon aktif yang dihasilkan pada pirolisis suhu 275 °C dengan kadar air, kadar abu, kadar *volatile matter* dan kadar *fixed carbon* berturut turut yaitu 3%; 10,2%; 23% dan 63,7%.

Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada UPT PPM Politeknik Negeri Malang yang telah memberi dukungan secara finansial pada penelitian ini.

Daftar Rujukan

- [1] Pari, G., Tri Widayati, D., & Yoshida, M. (2009). Mutu Arang Aktif Dari Serbuk Gergaji Kayu. *Jurnal Penelitian Hasil Hutan*, 27(4), 381–398. doi: 10.20886/jphh.2009.27.4.381-398
- [2] Kalavathy, M. H., Karthikeyan, T., Rajgopal, S., & Miranda, L. R. (2005). Kinetic and isotherm studies of Cu(II) adsorption onto H₃PO₄-activated rubber wood sawdust. *Journal of Colloid and Interface Science*, 292(2), 354–362. doi: 10.1016/j.jcis.2005.05.087
- [3] Supramono, D., & Hendrawan, A. (2019). Synthesis of activated carbon using mixed vacuum residue and castor oil. *AIP Conference Proceedings*, 2062(January). doi: 10.1063/1.5086599
- [4] Widayatno, T., Yuliatwati, T., & Susilo, A. A. (2017). Adsorpsi Logam Berat (Pb) dari Limbah Cair dengan Adsorben Arang Bambu Aktif. *Jurnal Teknologi Bahan Alam*, 1(1), 17–23. Retrieved from <https://journals.ums.ac.id/index.php/jtba/article/view/JTBA-0004>
- [5] Ridhuan, K., Irawan, D., & Inthifawzi, R. (2019). Proses Pembakaran Pirolisis dengan Jenis Biomassa dan Karakteristik Asap Cair yang Dihasilkan. *Turbo : Jurnal Program Studi Teknik Mesin*, 8(1), 69–78. doi: 10.24127/trb.v8i1.924
- [6] Achmad, I. R., Yani, M., Suprihatin, & Ridwan, W. A. (2018). Pemodelan Sistem Pengolahan Air Limbah Aktivasi Bentonit. *CHEESA*, 1(2), 43–57. doi: 10.25273/cheesa.v1i2.3137
- [7] Nandari, W. W., Prasetyo, I., & Fahrurrozi, M. (2016). Thermodynamics analysis on methane hydrate formation in porous carbon. *ASEAN Journal of Chemical Engineering (AJChE)*, 16(2), 8–20. doi: 10.22146/ajche.49891
- [8] Sa'diyah, K., Suharti, P. H., Hendrawati, N., Nugraha, I., Febrianto, A. N. (2017). Pembuatan Asap Cair dari Tempurung Kelapa. *Prosiding Seminar Nasional Rekayasa Proses Industri Kimia*, 1(ISSN: 2580-6572). Retrieved from <https://prosiding.polinema.ac.id/sngbr/index.php/snrpik/article/view/4>
- [9] Junary, E., Pane, J. P., & Herlina, N. (2015). Pengaruh suhu dan waktu karbonisasi terhadap nilai kalor dan karakteristik pada pembuatan bioarang berbahan baku pelepah aren (*Arenga pinnata*). *Jurnal Teknik Kimia USU*, 4(2), 46–52. doi: 10.32734/jtk.v4i2.1470
- [10] Saparudin, Syahrul, & Nurchayati. (2015). Pengaruh variasi temperatur pirolisis terhadap kadar hasil dan nilai kalor briket campuran sekam padi-kotoran ayam. *Dinamika Teknik Mesin*, 5(1), 16–24. Retrieved from <https://dinamika.unram.ac.id/index.php/DTM/article/view/46>
- [11] Turmuzi, M., & Syaputra, A. (2015). Pengaruh suhu dalam pembuatan karbon aktif dari kulit salak (*Salacca edulis*) dengan impregnasi asam fosfat (H₃PO₄). *Jurnal Teknik Kimia USU*, 4(1), 42–46. doi: 10.32734/jtk.v4i1.1459
- [12] Qiram, I., Widhiyanuriyawan, D., & Wijayanti, W. (2015). Pengaruh Variasi Temperatur Terhadap Kuantitas Char Hasil Pirolisis Serbuk Kayu Mahoni (*Switenia Macrophylla*) Pada Rotary 39 Kiln. *Jurnal Rekayasa Mesin*, 6(1), 39–44. doi: 10.21776/ub.jrm.2015.006.01.6
- [13] Rezaei, H., Yazdanpanah, F., Lim, C. J., Lau, A., & Sokhansanj, S. (2016). Pyrolysis of ground pine chip and ground pellet particles. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 94(10), 1863–1871. doi: 10.1002/cjce.22574
- [14] Maulinda, L., ZA, N., & Sari, D. N. (2017). Pemanfaatan Kulit Singkong sebagai Bahan Baku Karbon Aktif. *Jurnal Teknologi Kimia Unimal*, 4(2), 11. doi: 10.29103/jtku.v4i2.69
- [15] Sa'diyah, K., Lusiani, C. E., Chrisnandari, R. D., Witasari, W. S., Aula, D. L., & Triastutik, S. (2020). Pengaruh Proses Aktivasi Kimia Terhadap Karakteristik Adsorben dari Kulit Pisang Kepok (*Musa acuminata* L.). *Jurnal Chemurgy*, 04(1), 18–22. doi: 10.30872/cmg.v4i1.4074
- [16] Gumus, R. H., & Okpeku, I. (2015). Production of Activated Carbon and Characterization from Snail Shell Waste. *Advances in Chemical Engineering and Science*, 05(01), 51–61. doi: 10.4236/aces.2015.51006

Pemanfaatan Serbuk Gergaji Kayu sebagai Karbon Aktif melalui Proses Pirolisis dan Aktivasi Kimia

- [17] Haryati, S., Yulhan, A. T., & Asparia, L. (2017). Pembuatan Karbon Aktif dari Kulit Kayu Gelam (*Melaleuca leucadendron*) Yang Berasal dari Tanjung Api-Api Sumatera Selatan. *Jurnal Teknik Kimia*, 23(2), 77–86.
- [18] Rohmah, P. M., & Redjeki, A. S. (2014). Pengaruh waktu karbonisasi pada pembuatan karbon aktif berbahan baku sekam padi dengan aktivator KOH. *Jurnal Konversi*, 3(1), 19–27. Retrieved from <https://jurnal.umj.ac.id/index.php/konversi/article/view/1098>
- [19] Sepfitrah. (2016). Analisis Proximate Hasil Tambang di Riau (Studi Kasus Logas , Selensen dan Pangkalan Lesung). *Jurnal Sainstek STT Pekanbaru*, 4(1), 18–26. Retrieved from <http://sttpekanbaru.net/sainstek/index.php/js/article/view/140>
- [20] Kusdarini, E., Budianto, A., & Ghafarunnisa, D. (2017). Produksi Karbon Aktif Dari Batubara Bituminus Dengan Aktivasi Tunggal H_3PO_4 , Kombinasi $H_3PO_4-NH_4HCO_3$, Dan Termal. *Reaktor*, 17(2), 74. doi: 10.14710/reaktor.17.2.74-80
- [21] Maulana, G. G. R., Agustina, L., & Susi. (2017). Proses aktivasi arang aktif dari cangkang kemiri (*Aleurites moluccana*) Dengan variasi jenis dan konsentrasi aktivator kimia. *Ziraa'ah Majalah Ilmiah Pertanian*, 42(3), 247–256. Retrieved from <https://ojs.uniska-bjm.ac.id/index.php/ziraaah/article/view/897>

Research Article

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

The Effect of Stirring Time on the Polyblend Process of Poly Lactic Acid with Poly Ethylene Glycol-400 on the Viscosity and Density of Bioplastics

Puji Rahayu^{1*}, Sri Agustina², Meta Pramesty², Rosalina¹, Dwi Kemala Putri¹

¹)Politeknik ATI Padang, Teknik Kimia Bahan Nabati, Indonesia

²)Universitas Sultan Ageng Tirtayasa, Teknik Kimia, Indonesia

*correspondence email: pujirahayu@poltekatipdg.ac.id

Received: 05/04/2021; Revised: 08/12/2021; Accepted: 08/12/2021;

doi: [10.25273/cheesa.v4i2.8945.100-108](https://doi.org/10.25273/cheesa.v4i2.8945.100-108)

Abstrak

Plastik sintetik diketahui sulit terurai tetapi penggunaannya semakin meningkat. Beberapa upaya telah dilakukan seperti pembakaran, daur ulang hingga penimbunan di *storage* khusus. Saat ini banyak peneliti mencari alternatif bahan dasar pembuatan plastik, salah satunya adalah *Poly Lactic Acid* (PLA). PLA merupakan material bioplastik yang tersusun dari monomer-monomer asam laktat dari hasil reaksi kondensasi langsung. Sifat PLA yang hidrofilik membuat bioplastik membutuhkan *plasticizer* sebagai komponen penyusun agar lebih kuat. *Plasticizer* yang aman dan ramah lingkungan salah satunya Poli Etilen Glikol 400 (PEG-400). PEG-400 mampu memperbaiki kekuatan mekanik yang lebih stabil sehingga banyak digunakan dalam industri farmasi, kosmetik bahkan pangan. Tujuan penelitian ini untuk mengetahui pengaruh lama waktu pengadukan terhadap proses poliblend dengan indikator pengukuran densitas, viskositas dan kadar air larutan campuran. PLA/PEG-400 memiliki nilai densitas tertinggi sebesar 1,272 g/mL yaitu pada pengadukan menit ke-30. Sedangkan, nilai viskositas dan kadar air tertinggi diperoleh pada PLA/PEG-400 pada pengadukan menit ke-50 sebesar 212 cm²/det dan 53,821%.

Kata kunci: asam laktat; bioplastik; PEG; PLA; poliblend

Abstract

Synthetic plastics are known to be difficult to decompose but their use is increasing. Several efforts have been made, such as burning, recycling and stockpiling in special storage. Currently, many researchers are looking for alternative raw materials for making plastic, one of which is Poly Lactic Acid (PLA). PLA is a bioplastic material composed of lactic acid monomers from the direct condensation reaction. The hydrophilic nature of PLA makes bioplastics require plasticizers as constituent components to make them stronger. One of the safe and environmentally friendly plasticizers is Poly Ethylene Glycol 400 (PEG 400). PEG 400 is able to improve mechanical strength which is more stable so it is widely used in the pharmaceutical, cosmetic and even food industries. The purpose of this study was to determine the effect of stirring time on the polyblend process with indicators for measuring density, viscosity and water content of the mixed solution. The polyblend PLA/PEG-400 produced the highest density value of 1.272 g/mL at the 30th minute stirring. The highest values of viscosity and water content were obtained in PLA/PEG-400 at 50th minute stirring of 212 cm²/s and 53.821%.

Keywords: bioplastic; lactic acid; PEG; PLA; polyblend

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

1. Pendahuluan

Plastik merupakan polimer kimia yang banyak digunakan dalam keseharian. Saat ini, hampir setiap produk berbahan plastik karena sifat mekaniknya yang unggul, seperti ringan, kuat, tahan terhadap air dan harganya terjangkau [1,2]. Sebanyak 1,9 juta ton kebutuhan plastik masyarakat Indonesia tercatat pada tahun 2002. Dua tahun berselang meningkat secara berturut-turut sebesar 2,1 juta ton dan 2,3 juta ton [3,4]. Tahun 2018, kebutuhan tersebut kembali meningkat 1% dari kenaikan ekonomi nasional. Selain itu, tercatat konsumsi plastik diasumsikan naik mencapai 6% pada Anggaran Pendapatan dan Belanja Negara (APBN) 2019. Sedangkan timbunan sampah nasional dilaporkan oleh Kementerian Lingkungan Hidup dan Kehutanan (KLHK) mencapai 67,8 juta ton pada tahun 2020 yang artinya Indonesia sudah memproduksi dan menggunakan berpuluh-puluh juta ton plastik. Dengan demikian, plastik sudah menjadi kebutuhan yang akan terus meningkat di setiap tahun [4,5,6].

Jenis plastik yang banyak digunakan saat ini adalah polimer sintetik, yang memiliki dampak buruk bagi lingkungan. Polimer sintetik ini merupakan polimer yang diproduksi dari minyak bumi atau sering disebut petrokimia, yang menurut beberapa ahli jumlahnya semakin sedikit dan tidak dapat diperbaharui [1]. Beberapa jenis plastik sintetik yang banyak dijual di pasaran antara lain *Polypropylene* (PP), *Polyethylene* (PE), *Polyvinyl Chloride* (PVC) *Polystyrene* (PS) dan *Polyethylen Tereftalat* (PET). Jenis-jenis plastik tersebut tidak dapat terdegradasi oleh mikroorganisme [1]. Mikroorganisme yang ada di lingkungan khususnya tanah saat ini dianggap tidak mampu mengubah ataupun mensintesis enzim khusus pendegradasi

polimer petrokimia [1,5,7]. Akibatnya plastik tidak terurai meskipun tertimbun di dalam tanah, sehingga mempengaruhi nutrisi dan kualitas tanah bahkan air resapan dalam tanah.

Berbagai usaha dilakukan untuk memecahkan masalah ini diantaranya dengan pembakaran, daur ulang hingga penimbunan di *storage* khusus. Namun, hal tersebut dirasa belum efektif karena dapat menimbulkan efek negatif bahkan korosif dan beracun seperti HCl, HCN, NH₃ dan SO₂ terlebih pembakaran dilakukan dalam jumlah besar [8,9]. Daur ulang dan penimbunan juga akan berakibat buruk pada lingkungan, yaitu ketika barang-barang daur olahan dari plastik tidak lagi digunakan maka akan dibuang ke lingkungan. Sedangkan penimbunan pada *storage* khusus, juga tidak efektif karena tingkat pemakaian plastik semakin tahun semakin meningkat sehingga dibutuhkan *storage* khusus yang lebih besar kapasitasnya. Berdasarkan hal tersebut maka dibutuhkan alternatif bahan dasar pembuatan plastik yang alami. Spesifikasi kekuatan produk yang setara dengan plastik sintetik salah satunya adalah *Poly Lactic Acid* (PLA) [10,11].

Poly Lactat Acid atau Polimer Asam Laktat adalah material bioplastik yang terdiri dari monomer-monomer asam laktat dengan 3 (tiga) reaksi pembentukan. Reaksi tersebut adalah *direct condensation*, *azeotrop condensation* dan *lactide ring formation* [12]. Rahmayetty *dkk.* [13], melakukan sintesis polilaktida dari asam laktat dengan metode polimerisasi pembukaan cincin menggunakan katalis lipase. Azwar *dkk.* [2], menambahkan SnCl₂ pada sintesis Poli Laktida dan menghasilkan polimer dengan berat molekul 39.680,045 g/mol.

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

Pemanfaatan PLA sebagai unsur alami dalam pembuatan plastik mulai berkembang. Ibrahim *dkk.* [14], menyebutkan PLA mampu menghasilkan film dengan kuat tarik 11 MPa dan *elongation* 77%. Trinanda *dkk.* [11], membuktikan bahwa buah mangrove mengandung PLA yang dapat dikembangkan sebagai sintesis bioplastik dengan uji FTIR.

PLA memiliki kekurangan yaitu kekuatan mekanik yang rendah dan hidrofilik [11,15,16], sehingga perlu dilakukan modifikasi struktur penyusunnya dengan menambahkan *plasticizer*. Salah satu *plasticizer* yang dapat digunakan adalah Poli Etilen Glikol 400 (PEG 400) [17,18,19]. Selain memiliki kemampuan untuk memperbaiki kekuatan mekanik dan sifat hidrofilik, PEG-400 memiliki sifat utama yang lebih stabil sehingga banyak digunakan dalam industri farmasi, kosmetik bahkan pangan [20].

Penelitian ini membahas tentang proses pembuatan PLA dari asam laktat melalui proses polimerisasi kondensasi langsung. Selain itu, pengamatan yang dilakukan adalah memvariasikan waktu polimerisasi pada pembentukan PLA serta mengetahui efektifitas *plasticizer* PEG-400 yang dianalisis dari nilai densitas dan viskositasnya.

2. Metode Penelitian

2.1 Alat dan Bahan

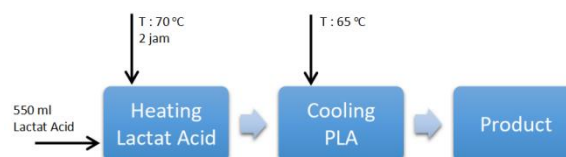
Adapun alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah *hot plate thermo Scientific*, *Beaker Glass* 250 mL, pengaduk, Oven laboratorium UN 55 53 L dan cetakan alumunium.

Bahan-bahan yang digunakan adalah PLA ($C_3H_6O_3$) Merck, dan *Polyethylene Glycol* (PEG-400) Alpha Chemical.

Terdapat 3 (tiga) tahapan utama pada penelitian ini yaitu: polimerisasi, poliblend dan analisis.

2.2 Polimerisasi

Proses ini dilakukan untuk membentuk PLA dengan proses polimerisasi langsung seperti ditampilkan pada Gambar 1.

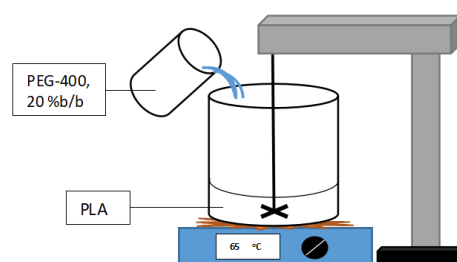


Gambar 1. Diagram proses polimerisasi asam laktat

Metode ini merupakan modifikasi dari penelitian Azwar *dkk.* [2], Ibrahim *dkk.* [14], dan Rahmayetti *dkk.* [13], yaitu larutan asam laktat sebanyak 550 mL disiapkan dalam labu leher tiga pada *water batch* dengan suhu 70 °C. Lebih lanjut, dilakukan pengadukan pada larutan tersebut selama 2 jam. Setelah itu, suhu operasi diturunkan menjadi 65 °C. Hasil pemanasan tersebut menghasilkan larutan PLA. Larutan tersebut diambil sebanyak 100 mL sebagai acuan atau larutan pembanding.

2.3 Poliblend

Poliblend adalah proses pencampuran PLA dengan *plasticizer* PEG-400. Proses poliblend dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Proses poliblend PLA dengan PEG-400

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

Adapun tahapan pada poliblend yaitu menyiapkan larutan PEG-400 20% b/b, kemudian larutan tersebut ditambahkan ke dalam PLA yang telah didinginkan pada suhu 65 °C. Campuran tersebut disebut larutan PLA/PEG-400 yang kemudian diaduk selama 1 jam dengan besaran pengadukan 15 rpm. Sampel yang akan diuji diambil pada menit ke-20; 30; 40 dan 50 selama waktu pengadukan sebanyak 10 mL. Larutan bioplastik tersebut kemudian dicetak pada cetakan dan didiamkan selama 12 jam.

2.4 Analisis

2.4.1 Densitas

Larutan PLA/PEG-400 yang dihasilkan dari proses polimerisasi diukur densitasnya menggunakan *picnometer*.

2.4.2 Viskositas

Larutan PLA/PEG-400 yang dihasilkan dari proses polimerisasi diukur viskositasnya menggunakan *viscometer Ostwald*.

2.4.3 Kadar Air

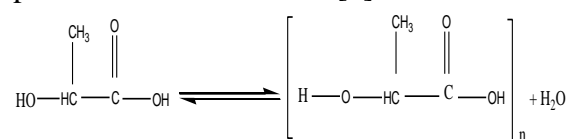
Proses pengukuran kadar air dilakukan dengan pengeringan produk hasil cetakan dengan oven. Suhu operasi pengeringan adalah 105 °C selama 8 jam dan ditimbang setiap 1 jam sekali sampai konstan.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 Polimerisasi Asam Laktat

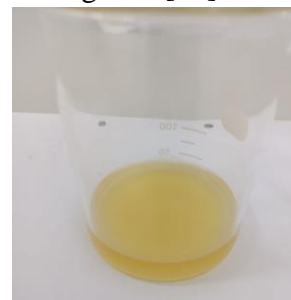
Jenis polimerisasi asam laktat pada penelitian ini adalah sintesis dengan metode *direct condensation* dengan reaksi bolak-balik (*reversible*) seperti pada Gambar 3. Dari hasil reaksi polimerisasi asam laktat tersebut, air merupakan hasil samping yang kurang diharapkan. Dalam penelitiannya, Rahmayetti *dkk.* [13]

menyatakan bahwa molekul air harus selalu minimum karena dapat menyebabkan proses polimerisasi tidak maksimal. Jika massa molekul air rendah maka PLA yang dihasilkan memiliki massa molekul yang tinggi. Selain temperatur polimerisasi, massa molekul PLA juga dipengaruhi oleh *optical purity* laktida. [11]. Sedangkan untuk penggunaan pada bioplastik massa molekul PLA yang disarankan memiliki nilai diatas 100.000 g/mol [1]. Massa molekul PLA dapat ditingkatkan salah satunya dengan polimerisasi kondensasi [1].



Gambar 3. Pembentukan PLA [11]

Dari proses polimerisasi kondensasi yang telah dilakukan selama 2 jam menghasilkan PLA berwarna kekuningan dan bening (Gambar 4). PLA jenis ini biasanya hasil campuran rasemik (D,L-PLA) yang mempunyai struktur acak dan tidak beraturan (*amorf*), sehingga lebih diminati untuk dijadikan bahan baku plastik [6]. Selain itu, (D,L-PLA) memiliki waktu degradasi yang lebih cepat dari pada L-PLA. Proses polimerisasi juga dipengaruhi oleh waktu proses dan suhu, sehingga berpengaruh juga pada massa molekul PLA. Massa molekul PLA yang dihasilkan masih dalam kategori rendah yaitu 500-2300 g/mol [10].



Gambar 4. Hasil Polimerisasi Asam Laktat

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

3.2 Poliblend PLA dengan PEG-400 (PLA/PEG-400)

Selama proses poliblend dilakukan pengadukan secara terus-menerus dengan kecepatan 15 rpm. Hal tersebut dimaksudkan agar reaksi antar komponen pembentuk bioplastik dapat berlangsung secara sempurna. Proses pengadukan dan pemanasan bertujuan untuk menguapkan sedikit air dari produk samping proses polimerisasi kondensasi sebelumnya.

PEG-400 dengan rumus kimia $[-CH_2-CH_2-O]_n$ bertindak sebagai *plasticizer* karena senyawa ini merupakan molekul hidrofilik yang berukuran kecil sehingga dapat dengan mudah masuk dan berikatan dengan rantai PLA. Masuknya PEG-400 ke dalam ikatan PLA akan mengurangi interaksi dan kedekatan antar rantai molekul sehingga pergerakan rantai molekul menjadi lebih bebas. Dengan penambahan PEG-400 maka bioplastik yang dihasilkan akan lebih fleksibel dan sifat rapuh (retak) dapat berkurang.

3.3 Karakteristik PLA

Karakteristik dari PLA didefinisikan melalui sifat fisik dan sifat kimia seperti densitas dan viskositas. Penelitian ini menghasilkan data densitas dan viskositas seperti pada Tabel 1.

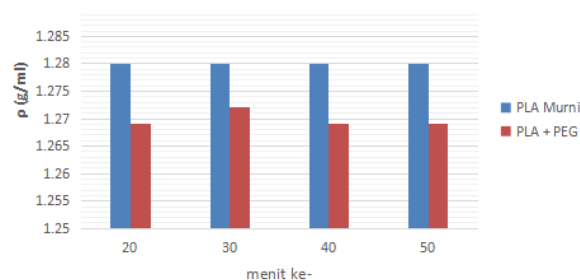
Tabel 1. Data Hasil Analisis Larutan Bioplastik

Sampel	Waktu blending (g/mL)	ρ (g/mL)	μ (cm ² /det)	Kadar air (%)
PLA Murni		1,280	111	64,711
PLA/PEG-400	20	1,269	195,33	23,112
	30	1,272	202	27,959
	40	1,269	206	42,344
	50	1,269	212	53,821

3.4 Analisis Densitas

Analisis densitas dilakukan untuk melihat perubahan densitas setelah proses polimerisasi dengan perbandingan waktu

pengadukan. Adapun hasil analisis tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Hasil analisis densitas PLA dan PLA/PEG-400 dengan variasi waktu pengadukan

Hasil analisis menunjukkan penambahan PEG-400 tidak berpengaruh secara signifikan terhadap PLA. Sampel pertama merupakan PLA murni, dengan nilai densitas sebesar 1,28 g/mL, sedangkan PLA/PEG-400 menit ke-30 diperoleh nilai densitas sebesar 1,272 g/mL yaitu memiliki selisih 0,01 g/L yang bisa dianggap tidak ada perubahan. Hasil tersebut tidak jauh berbeda pada pengambilan sampel pertama yaitu PLA murni dengan PLA/PEG-400 pada menit ke 30. Berdasarkan hasil tersebut diketahui bahwa waktu pengadukan pada proses poliblend tidak berpengaruh secara signifikan terhadap nilai densitas yang dihasilkan. Proses pengadukan dilakukan sebagai upaya untuk mengurangi kadar air saja yang terkandung dalam larutan bioplastik dan tidak berpengaruh terhadap proses pencampuran. Densitas bioplastik PLA mengacu pada PLA murni pada penelitian ini yaitu 1,28 g/mL sehingga penambahan PEG-400 dapat direkomendasikan karena mampu meningkatkan kelenturan bioplastik yang dihasilkan. Jamshidian *dkk.* [21], menyebutkan karakteristik fisik dari PLA memiliki *melt density* dan *solid density* dari 1,073 – 1,252 g/mL. Meskipun nilai

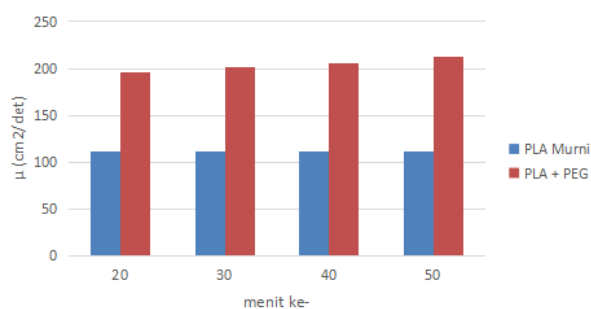
Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

densitas yang diperoleh pada penelitian ini lebih tinggi, tetapi hasil tersebut masih diperbolehkan dengan selisih nilai 0,03 g/mL.

PEG-400 berperan sebagai *plasticizer* yang mampu melenturkan bioplastik yang dihasilkan. Nilai densitas merupakan nilai kerapatan dari suatu zat, semakin tinggi nilai densitas kerapatannya semakin besar. Ketika suatu campuran mengalami pelenturan, kerapatannya akan semakin kecil sehingga berpengaruh terhadap sifat mekanik dari bioplastik yang menyebabkan plastik yang dihasilkan akan mudah rusak. Proses pengadukan dapat mengurangi kadar air pada bioplastik sehingga tidak mudah hancur. Hasil ini menggambarkan bahwa PEG-400 pada bioplastik yang dihasilkan bersifat lentur tetapi tetap kuat. PEG-400 juga sering digunakan sebagai pelarut dibidang farmasi sehingga aman bagi tubuh manusia. Selain itu, bioplastik yang dihasilkan aman juga bila digunakan sebagai kemasan makanan [12,14].

3.5 Analisis Viskositas

Analisis viskositas dilakukan untuk melihat perubahan kekentalan pada sampel setelah proses polimerisasi dengan variasi waktu pengadukan. Hasil analisis tersebut dapat dilihat pada Gambar 5.



Gambar 5. Hasil analisis viskositas PLA dan PLA/PEG-400 dengan variasi waktu pengadukan

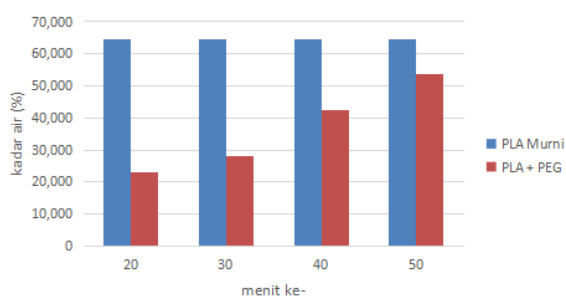
Gambar 5 menunjukkan bahwa kenaikan viskositas terjadi seiring dengan lamanya waktu polimerisasi. PLA murni memiliki viskositas lebih rendah yaitu sebesar 111 cm²/det dibandingkan PLA/PEG-400 yaitu berturut-turut 195,33; 202; 206 dan 212 cm²/det pada menit ke-30, 40, dan 50. Peningkatan viskositas tersebut membuktikan bahwa penambahan elastisitas terjadi karena faktor lama waktu pengadukan. Pada proses pengadukan terjadi pengurangan kadar air yang menjadikan larutan bioplastik lebih kental. Semakin lama pengadukan semakin banyak pula air yang menguap sehingga terjadi pengentalan. Pengentalan tersebut diharapkan agar kerapatan dari molekul pembentuk terjadi lebih maksimal sehingga bioplastik yang dihasilkan akan lebih lentur dan tidak mudah pecah. Lama waktu pengadukan berpengaruh terhadap nilai viskositas yang dihasilkan, semakin lama waktu pengadukan nilai viskositas makin meningkat. Dalam kata lain, larutan yang semula encer setelah pemanasan dan pengadukan menjadi larutan yang lebih kental.

Blending PEG-400 ke dalam PLA akan meningkatkan viskositas seiring penambahan waktu *blending*. Hal ini terjadi karena proses pengadukan dapat membantu suatu campuran merata secara sempurna sehingga larutan bioplastik lebih homogen [10,22]. Nilai viskositas menggambarkan kekentalan dari suatu cairan dengan menghitung jarak tempuh suatu cairan terhadap waktu perpindahannya. Selain itu, viskositas juga berkaitan dengan kemampuan suatu zat dalam menghadapi tekanan maupun tegangan. Sehingga, semakin tinggi nilai viskositasnya maka kemampuan bertahan terhadap tekanan maupun tegangan suatu zat akan semakin tinggi [23].

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

3.6 Analisis Kadar Air

Hasil analisis kadar air dapat dilihat pada Gambar 6. Dari hasil perhitungan kadar air, PLA yang dihasilkan cukup mengandung banyak air. Pada pembuatan bioplastik kandungan kadar air yang disarankan tidak melebihi 55% [6]. Hasil penelitian ini menunjukkan hasil pengukuran kadar air tertinggi adalah 63% untuk PLA murni sedangkan untuk PLA/PEG-400 dihasilkan nilai kadar air tertinggi adalah 53% pada menit ke 50. Meskipun hasil tersebut terbilang tinggi tetapi rentangnya masih dibawah nilai PLA murni. Sehingga disimpulkan bahwa penambahan PEG-400 secara umum dapat mengurangi kadar air. Namun, bila dibandingkan dengan lama waktu pengadukan, hasil hitung kadar air semakin tinggi saat pengadukan dilakukan lebih lama. Hal itu bukan sesuatu yang diharapkan karena seharusnya lama waktu pengadukan mampu mengurangi kadar air lebih banyak.



Gambar 6. Hasil analisis kadar air PLA dan PLA/PEG-400 dengan variasi waktu pengadukan

Pada pengadukan menit ke 20, 30 dan 40 dihasilkan persen kadar air sebesar 23,112%, 27,959% dan 42,344% yang masih dibawah kadar air yang disyaratkan. Hasil tersebut dimungkinkan karena uap air yang teruapkan kembali mengembun dan masuk ke dalam larutan bioplastik, sehingga perhitungan kadar air meningkat.

Azwar *dkk.* [2] menyarankan dilakukan distilasi agar kondensasi pada pemanasan PLA tidak menurunkan rendemen.

Kadar air ini sebenarnya bisa menjadi sesuatu yang baik karena bioplastik diharapkan agar lebih mudah terurai saat dibuang ke lingkungan. Proses penguraian plastik dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti, unsur tanah, iklim, udara dan air [11]. Air merupakan faktor penting karena kelembaban yang dihasilkan mampu mempercepat pertumbuhan bakteri sehingga proses penguraian lebih cepat. Hanya saja masih perlu penambahan *reinforcing element* yang tetap aman dan tidak bersifat kontaminan bila digunakan sebagai kemasan makanan.

4. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan maka dapat disimpulkan bahwa lamanya waktu *blending* PLA dengan PEG-400 mempunyai pengaruh yang signifikan terhadap nilai viskositas dan kadar air. Nilai viskositas yang diperoleh cukup membuktikan bahwa lama waktu pengadukan sangat berpengaruh terhadap nilai viskositas yang menunjukkan tingkat kekentalan larutan bioplastik yang akan dicetak. Semakin lama waktu pengadukan akan membuat larutan bioplastik semakin kental dan memiliki kerapatan yang maksimal.

Kadar air yang diperoleh dari penelitian ini memiliki rentang yang cukup sebagai syarat larutan bioplastik yaitu tidak melebihi 55% yaitu pada penelitian ini dihasilkan kadar air tertinggi 53% pada pengadukan menit ke 50. Hasil tersebut sebenarnya dapat disempurnakan dengan proses kondensasi agar uap air yang telah menguap tidak kembali lagi ke dalam

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

larutan bioplastik yang menghasilkan kadar airnya meningkat pada saat pengadukan lebih lama. Sedangkan untuk nilai densitas yang diperoleh tidak mengalami perubahan yang signifikan.

Hasil penelitian menunjukkan PEG-400 tidak mempengaruhi densitas pada larutan bioplastik.

Daftar Rujukan

- [1] Wijayanti, K. P., Dermawan, N., Faisah, S. N., Prayogi, V., Judiawan, W., Nugraha, T., & Listyorini, N. T. (2016). Bio-degradable Bioplastics sebagai Plastik Ramah Lingkungan. *Surya Octagon Interdisciplinary Journal of Technology*, 1(2), 131-153
- [2] Azwar, E., Sinulingga, R. F., & Hanif, M. (2018). Pengaruh Konsentrasi SnCl₂ dan Temperatur Polimerisasi pada Sintesis Poli Laktida dengan Metode Ring-Opening Polymerization. *Prosiding, Seminar Nasional SINTA yang diselenggarakan FT UNILA, tanggal 19 Oktober 2018*. Lampung: Universitas Negeri Lampung.
- [3] Pambudi, H., Indrawati, S. M., Mardiasmo, & Hadiyanto. *Bumi Dalam Kantong Plastik*. (2019). Media Keuangan. Jakarta
- [4] Devi, B. C., Febriansyah, B. A., Nurkhamidah, S., & Rahmawati, Y. (2019). Studi Pemilihan Proses Pabrik Poly-L-Lactic Acid (PLLA) dari Tetes Tebu. *Jurnal Teknik ITS*, 8(2), 164-169, Retrieved from <https://ejurnal.its.ac.id/index.php/teknik/article/view/46456>
- [5] Natalia, E. V & Muryeti. (2020). Pembuatan Plastik Biodegradable Dari Pati Singkong Dan Kitosan. *Journal Printing and Packaging Technology*, (1), 57-68.
- [6] Qodriyatun, S. N. (2019). *Sampah plastik dan implikasi kebijakan pembatasan plastik sekali pakai terhadap industri dan masyarakat* (Cetakan pertama.). Jakarta: Pusat Penelitian Badan Keahlian DPR RI bekerja sama dengan Intrans Publishing.
- [7] Said, A. (2018). Sintesis plastik biodegradable berbahan komposit pati sagu-kitosan sisik ikan katamba (*Lethrinus lentjam*). *QUANTUM: Jurnal Inovasi Pendidikan Sains*, 9(1), 23-30. Retrieved from <https://ppjp.ulm.ac.id/journal/index.php/quantum/article/view/4857>
- [8] Hidayati, S., Zuidar, A. S., & Ardiani, A. (2015). Aplikasi sorbitol pada produksi biodegradable film dari nata de cassava. *Reaktor*, 15(3), 195-203. doi: 10.14710/reaktor.15.3.195-203
- [9] Utomo, S. (2012). Bahan berbahaya dan beracun (B-3) dan keberadaannya di dalam limbah. *Jurnal Konversi*, 1(1), 37-46. Retrieved from <https://jurnal.umj.ac.id/index.php/konversi/article/view/1120>
- [10] Kaitian X., Kozluca, A., Denkbas E. B., & Piskin E. (1995). Poly (D, L-Lactic Acid) Homopolymers: Synthesis and Characterization. *Turkish Journal of Chemistry*, 20(1), 43-53.
- [11] Trinanda, L., Narulita S. D., Anggorowati, H. I., Afandi, I., Siagian, I. I., Andayani, R. (2017). Sintesis Bioplastik (Poly Lactic Acid) dari Buah Mangrove Sonneratia Caseolaris. *Prosiding, Seminar Nasional Kelautan XII yang diselenggarakan oleh FTIK Universitas Hang Tuah, tanggal 20 Juli 2017*. Surabaya : Universitas Hang Tuah.
- [12] Kemala, T., Sjahriza A. & Komariah S. (2010). Emulsi dan Ultrasonikasi dalam Pembentukan Nanoenkapsulasi Ibuprofen Tersalut Polipaduan Poli (Asam Laktat) dengan Poli (e-Kaprolakton). *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 12(3), 181-187. Retrieved from <http://jurnal.batan.go.id/index.php/jsmi/article/view/4612>
- [13] Rahmayetty, Ria D, Irawan A, Suhendi E, Sukirno, Prasetya B, Gozan M. (2016). Sintesis Polilaktida (PLA) dari Asam Laktat Dengan Metode Polimerisasi Pembukaan Cincin Menggunakan Katalis Lipase. *Prosiding, Seminar Nasional Sains dan Teknologi yang diselenggarakan oleh FT UMJ, tanggal 8 November 2016*. Jakarta: Universitas Muhammadiyah Jakarta. Retrieved from <https://jurnal.umj.ac.id/index.php/semnastek/issue/view/94/showToc>

Pengaruh Waktu Pengadukan pada Proses Poliblend *Poly Lactic Acid* dengan *Poly Ethylene Glycol-400* Terhadap Viskositas dan Densitas Bioplastik

-
- [14] Ibrahim A., Wijaya H. C., Achmadi S., S, Haryadi Y. (2006). Polikondensasi Azeotropik Asam Laktat menjadi Poli Asam Laktat sebagai Bahan Baku Kemasan. *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 8(1), 58-64. Retrieved from <http://jurnal.batan.go.id/index.php/jsmi/article/view/4819>
- [15] P. Nurindah R., Siswanto, R. Djony I. (2016). Pengaruh Katalis Stannous Oktoat (Sn(Oct)₂) Terhadap Karakteristik *Poly Lactic Acid* (PLA). *Jurnal Fisika dan Terapannya Unair*, 4(2), 53-61.
- [16] Warsiki E., & Farobie O. (2007). Review Pembuatan Asam Polilaktat (PLA) dari Gliserol sebagai Hasil Samping Industri Biodiesel. *Konferensi Nasional 2007: Pemanfaatan Hasil Samping Industri Biodiesel dan Industri Etanol serta Peluang Pengembangan Industri Integratednya*, 305-315.
- [17] Rifqiani A., Desnita R., & Luliana S. (2019). Pengaruh Penggunaan PEG-400 dan Gliserol sebagai Plasticizer Terhadap Sifat Fisik Sediaan Patch Ekstrak Etanol Herba Pegagan (*Centella Asiatica* (L) Urban). *Jurnal Mahasiswa Farmasi Fakultas Kedokteran UNTAN*, 4(1), 1-10. Retrieved from <https://jurnal.untan.ac.id/index.php/jmfarmasi/article/view/34068>
- [18] Maruddin F., Ako A., Hajrawati, Taufik M. (2017). Karakteristik Edile Film Berbahan Whey dan Kasein yang Menggunakan Jenis Plasticizer Berbeda. *Jurnal Ilmu dan Teknologi Peternakan, Unhas Makassar*, 5(2), 97-101. Retrieved from <https://journal.unhas.ac.id/index.php/peternakan/article/view/3081>
- [19] Nofiandi D., Rasyadi Y., Zaunit M. M., Pratiwi M. (2021). Formulasi dan Karakterisasi Edible Film dari Poliblen Pati Umbi Talas Kimpul - Polivinil Alkohol. *Jurnal Katalisator*, 6(1), 88-98. Retrieved from <http://publikasi.lldikti10.id/index.php/katalisator/article/view/281>
- [20] Nurminah, M. (2002). Penelitian Sifat Berbagai Bahan Kemasan Plastik dan Kertas serta Pengaruhnya Terhadap Bahan yang Dikemas. *Jurnal Fakultas Pertanian USU*, 1-13.
- [21] Jamshidian, M., Tehrany E. A., Imran M., Jacquot M., & Desobry S. (2010). Poly-Lactic Acid: Production, Applications, Nanocomposites, and Release Studies. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*. 9, 552-571. doi: 10.1111/j.1541-4337.2010.00126.x
- [22] Wang N., Yu J., & Ma X. (2007) Preparation and characterization of thermoplastic starch/PLA blends by one-step reactive extrusion, *Polymer International*, 56(11), 1440–1447, doi: 10.1002/pi.2302
- [23] Warsito, Suciwati W., S, & Isworo D. (2012) Desain dan Analisis Pengukuran Viskositas dengan Metode Bola Jatuh Berbasis Sensor Optocoupler dan Sistem Akuisisinya pada Komputer, *Jurnal Natur Indonesia*, 14(3), 230-235. doi: 10.31258/jnat.14.3.230-235

Research Article

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the Adsorption of Iron Ions in Batik Waste

Optimasi Pembuatan Arang Aktif dari Kulit Kolang-Kaling sebagai Adsorben Ion Logam Fe Limbah Batik

Herawati Oktavianty^{1*}, Sunardi¹, Elfandra Pramudito Laksono¹

¹Stiper Agricultural University, Department of Agricultural Product Technology, Indonesia

*correspondence email: hera.oktavianty@gmail.com

Received: 22/06/2021; Revised: 14/12/2021; Accepted: 22/12/2021;

doi: [10.25273/cheesa.v4i2.9609.109-118](https://doi.org/10.25273/cheesa.v4i2.9609.109-118)

Abstract

Efforts have been made to improve the synthesis of activated charcoal from sugar palm shells (*Arenga pinnata*). Therefore, the purpose of this study was to use the activated charcoal from sugar palm shells to adsorb Iron (Fe) ions contained in batik waste. Charcoal was activated with a 20-30% phosphoric acid solution (H_3PO_4), dried at 110 °C for 3 hours, and then calcined at a range of 700-900 °C for 3-5 hours. The results demonstrated that the optimal adsorption of Fe ions was achieved under conditions of 25% H_3PO_4 concentration, calcination at 800 °C for 4 hours, yielding 46.94% adsorbed Fe, and the largest surface area of 45.087 m²/g.

Keywords: adsorbent; activated charcoal; batik waste; Fe ions; sugar palm shell

Abstrak

Telah dilakukan penelitian tentang optimasi pembuatan arang aktif dari kulit kolang-kaling (*Arenga pinnata*). Tujuan dari penelitian ini adalah untuk menyerap ion logam Fe yang terkandung pada limbah batik dengan menggunakan arang aktif dari kulit kolang-kaling. Arang diaktifkan dengan menggunakan larutan asam fosfat dengan rentang konsentrasi 20-30%, kemudian dikeringkan pada suhu 110°C selama 1 jam, dan dikalsinasi dengan rentang suhu 700-900 °C untuk rentang waktu 3-5 jam. Hasil menunjukkan bahwa kondisi adsorpsi optimal dihasilkan pada penggunaan konsentrasi 25% asam fosfat, suhu kalsinasi 800 °C, dengan lama kalsinasi 4 jam dimana ion Fe yang terserap sebesar 46,94%. Pada suhu kalsinasi 800 °C menghasilkan adsorben dengan luas permukaan tertinggi yaitu 45,087 m²/g.

Kata kunci: adsorben; arang aktif; ion Fe; kulit kolang-kaling; limbah batik

1. Introduction

In Indonesia, the batik industry is classified into large, medium, small, and even home scale industries. The pollution caused by the batik industry not only occurs in industrial areas but also in densely populated settlements.

Furthermore, one of the Small Medium Enterprises (SMEs) in Yogyakarta produces around 125 L of liquid waste per kg of batik [1] and this liquid waste contains 4.23 mg/L COD, 5.47 mg/L ammonia, 535 mg/L phenol, 535 mg/L TSS, 2.0587 mg/L Fe, and other metals [2].

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

The presence of heavy metals in water or wastewater with concentrations exceeding the threshold can damage normal biological cycles in the environment. Among the metal ions polluting the environment are cadmium, lead, zinc, mercury, copper, and iron [3][4]. Filtration, chemical precipitation, ion exchange adsorption, electrodeposition, and membrane systems are techniques that have been developed for the extraction of heavy metals from water [5]. One technique that has been widely developed is the principle of solid-phase extraction utilizing specific adsorbents because it does not require hazardous solvents. The effort to control metal ion waste has recently increased, prompting the search for novel methods that are cheap, effective, and efficient. One method is by using activated charcoal as a medium to adsorb metals.

Silica and bentonite can adsorb heavy metal Fe in batik waste by 49.48% and 2.9%, respectively [2]. Another study conducted metal adsorption on batik waste using corn husk cellulose as the adsorbent, and it was able to reduce Cr metal content by 28.94% [6]. This indicates that natural materials and waste containing cellulose can be processed into adsorbents to adsorb metals in waste.

In the Limbangan sub-district, Kendal district, sugar palms are quite abundant and 50 kg of their shells are produced as waste from 100 kg of the palms [7]. This waste is usually only disposed of and used as natural compost, but composting takes a long time. The shell is relatively strong and contains lignin, cellulose, and hemicellulose [8]. Furthermore, it contains porous fibers that have the potential to be used as activated carbon [9]. Therefore, using this shell as a

metal adsorbent makes it more beneficial for adsorbing bulk metals than being composted.

The purpose of this study was to convert sugar palm shells into activated charcoal and obtain optimal conditions for the synthesis of activated charcoal from the shells to be used as an adsorbent for Fe ions in batik liquid waste.

2. Material and Method

This experiment was held in the Agricultural Technology Laboratory, Stiper Agricultural University, Yogyakarta. The materials used are sugar palm shells obtained from Tercel village, Limbangan District, Kendal regency, pH meter, filter paper, phosphoric acid (H_3PO_4) and aquadest obtained from Chem-Mix Pratama Yogyakarta.

2.1. Semi-carbonized sugar palm shell

A 2 kg sugar palm shell was collected and placed in a barrel to be semi-carbonized in an oven at 110 °C before being analyzed for cellulose, lignin, and hemicellulose. The charcoal was ground and sieved using a Tyler sieve with a mesh size of 60 [10].

2.2. Charcoal activation process

A 10 g charcoal was dissolved in a 20-30% H_3PO_4 solution then soaked for 24 hours. It was dried in an oven at 110 °C for 1 hour. The mixture was then calcined at 700-900 °C for 3-5 hours.

2.3. Fe ions adsorption process

Activated charcoal and batik liquid waste were stirred for 40 minutes and each sample was analyzed by Atomic Absorption spectrophotometer (AAS) AA-6200 Shimadzu.

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

2.4. Experimental design

Design expert 12.0 software was used in processing the data. The method used was the Response surface methodology (RSM), which is a simple and efficient method that simplifies process optimization[11]. In addition, the experimental design of activated charcoal synthesis was determined by using important parameters namely, phosphoric acid concentration, temperature, and calcination time, and central composite design was chosen as the experimental design. The RSM is an experimental strategy that is used when the response is influenced by multiple factors with the objective of this study being to determine the optimum response. RSM problems include selecting a suitable design for optimization and a factor space search method to reach the optimum quickly. This experiment consisted of 16 trial runs and the polynomial equation is shown in equation 1 [12][13][14][15].

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 \beta_i X_i + \sum_{i=1}^3 \beta_{ii} X_i^2 + \dots + \sum_{i < j} \beta_{ij} X_i X_j \dots \dots \dots (1)$$

3. Result and Discussion

Table 1 shows the results of the adsorbed Fe ions and Table 2 shows the significance of each factor by testing the F-value and p-value. A high F-value and a low p-value < 0.05 indicate variables that have a significant effect on the observed response.

Based on the results of ANOVA for adsorbed Fe ions, factor B is the most significant factor, with a low p-value (0.0835) and a high F-value (4.30). The objective function of the results of this test is used to determine the optimal H₃PO₄ concentration (X₁), calcination temperature (X₂), and calcination time (X₃). Subsequently, the interaction between the

operating variables and the adsorbed Fe ions can be expressed mathematically in a 2nd order polynomial equation based on equation 2.

$$Y = -817.03972 + 5.25828X_1 + 1.90092X_2 + 14.23310X_3 - 0.00102X_1X_2 - 0.0342X_1X_3 - 0.0017X_2X_3 - 0.088166X_1^2 - 0.001156X_2^2 - 1.52414X_3^2 \dots \dots \dots (2)$$

The coefficient of determination is used for order selection, with the recommended model being that with the highest value. The coefficient of determination (R²) for the 2nd order polynomial equation in this study is 0.9395, indicating a 93.95% match between the experimental and predicted data. In addition, the model can be declared accurate if the value of R² exceeds 70% implying that the value estimated by the model is close to the value obtained from the experimental results [16].

3.1. Interaction between H₃PO₄ concentration and calcination temperature to adsorb Fe ions

Figures 1 and 2 showed a contour graph between H₃PO₄ concentration and calcination temperature, and a 3D optimization chart between H₃PO₄ concentration and calcination temperature respectively. The higher the H₃PO₄ concentration, the more concentrated the activator used. Furthermore, there will be blockages in the pores of the activated charcoal due to the high ash content. The higher the ash content in activated charcoal, the more pores will become clogged [17]. However, the higher the calcination temperature employed, the greater the pore surface area of the adsorbent, and the greater the adsorption of the adsorbent [18].

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste**Table 1.** Adsorbed Metal Ions Results

Run	H ₃ PO ₄ Conc. (%)	Temperature (°C)	Time (h)	Adsorbed Fe (%)
1	20	700	3	26,53
2	20	700	5	27,21
3	20	800	4	39,12
4	20	900	3	31,63
5	20	900	5	30,95
6	25	700	4	27,55
7	25	800	3	40,14
8	25	800	4	46,6
9	25	800	4	46,94
10	25	800	5	39,8
11	25	900	4	32,31
12	30	700	3	26,87
13	30	700	5	26,19
14	30	800	4	39,46
15	30	900	3	29,25
16	30	900	5	28,57

Table 2. ANOVA Results

Source	Coeff.	Df	F-value	p-value
Model	-817.03972	9	10.35	0.0051
X ₁ -H ₃ PO ₄ Conc (%)	5.25828	1	0.3318	0.5855
X ₂ -Temp (°C)	1.90092	1	4.30	0.0835
X ₃ -Time (h)	14.23310	1	0.0369	0.8541
X ₁ X ₂	-0.001020	1	0.2655	0.6248
X ₁ X ₃	-0.034000	1	0.0295	0.8693
X ₂ X ₃	-0.001700	1	0.0295	0.8693
X ₁ ²	-0.088166	1	1.63	0.2484
X ₂ ²	-0.001156	1	44.98	0.0005
X ₃ ²	-1.52414	1	0.7813	0.4108

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

Factor Coding: Actual
 ● Design Points
 26.19 46.94
 X1 = A: H₃PO₄ Concentration
 X2 = B: Temperature
Actual Factor
 C: Time = 4

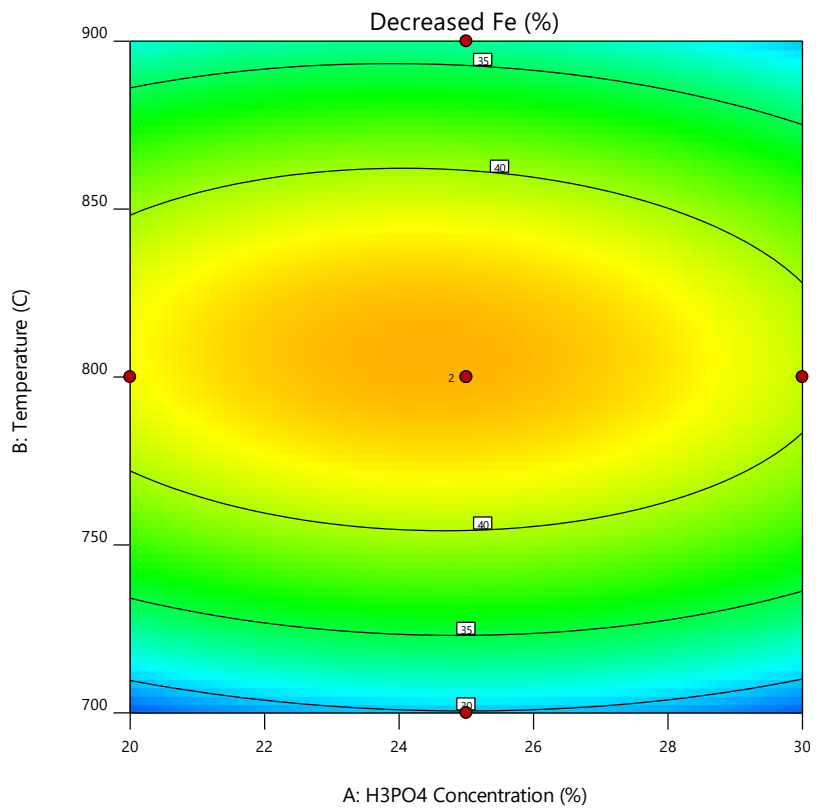


Figure 1. Contour graph of H₃PO₄ concentration vs calcination temperature

Factor Coding: Actual
 Design Points:
 ● Above Surface
 ○ Below Surface
 26.19 46.94
 X1 = A: H₃PO₄ Concentration
 X2 = B: Temperature
Actual Factor
 C: Time = 4

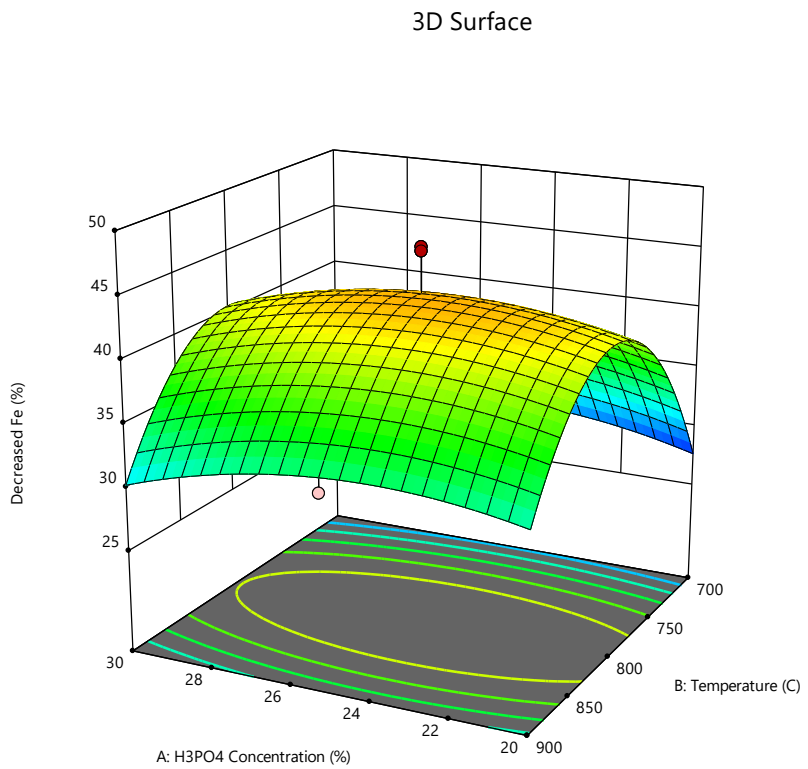


Figure 2. 3D Optimization chart of H₃PO₄ concentration vs calcination temperature

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

3.2. Interaction between H_3PO_4 concentration and calcination time to adsorb Fe ions

Figures 3 and 4 showed the contour graph between H_3PO_4 concentration and calcination time, and a 3D optimization chart of H_3PO_4 concentration against calcination time respectively. It was discovered that increasing the calcination time did not significantly affect the adsorbed Fe ions. These ions adsorbed by

the activated charcoal were less than optimal due to the increased concentration of H_3PO_4 used. Subsequently, this resulted in a large number of activators that were not activated by the sugar palm shell charcoal, causing a pile of dirt in the pores. activated carbon pores become damaged if the activator is too large, resulting in a decreased pore volume and low adsorption [18].

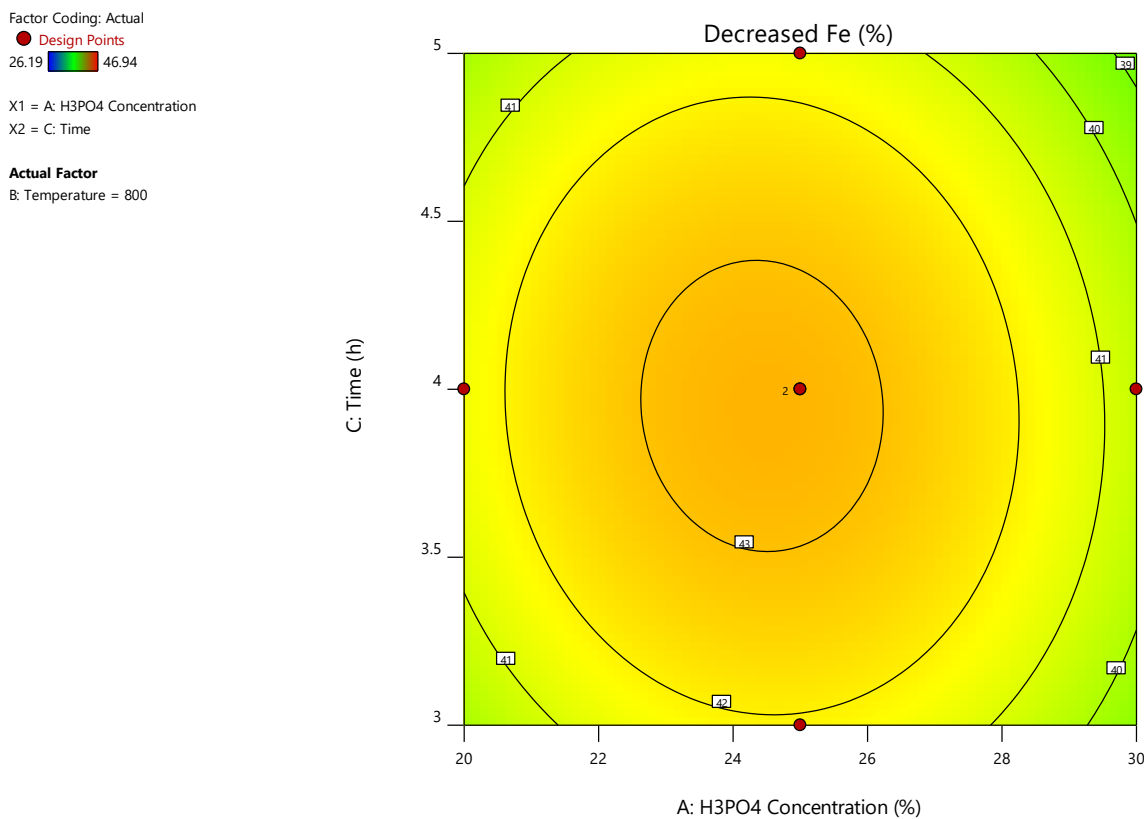


Figure 3. Contour graph of H_3PO_4 concentration vs time of calcination

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

Factor Coding: Actual
 Design Points:
 ● Above Surface
 ○ Below Surface
 26.19 46.94
 X1 = A: H3PO4 Concentration
 X2 = C: Time
Actual Factor
 B: Temperature = 800

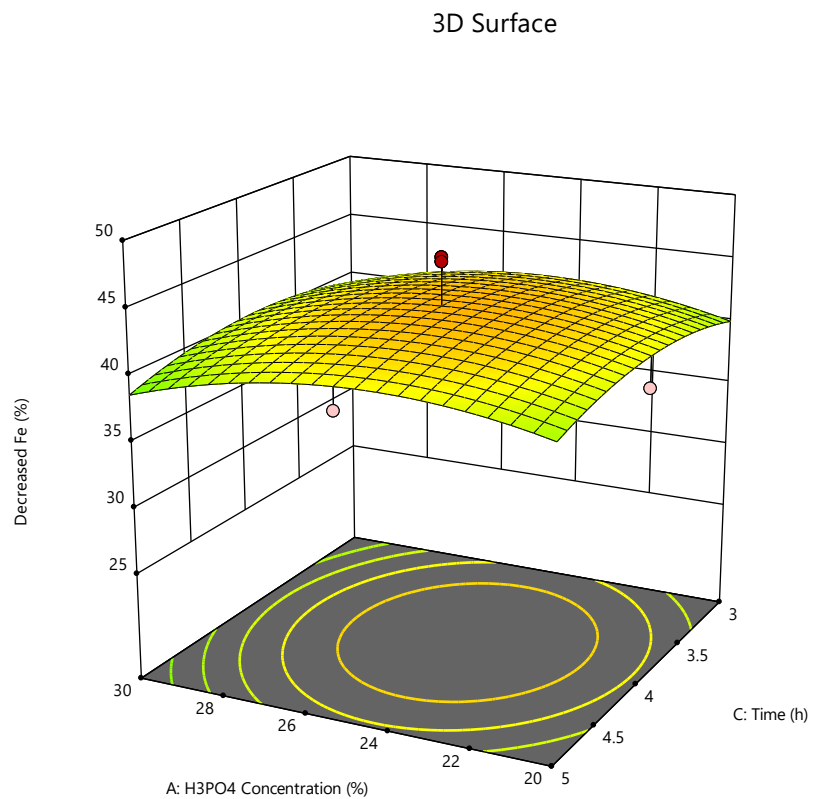


Figure 4. 3D Optimization chart of H₃PO₄ concentration vs time of calcination

3.3 Effect of temperature and calcination time on adsorption of Fe ions

Figure 5 and 6 shows the interaction between temperature and calcination time and the resulting adsorbed Fe ions. Calcination temperature is a sensitive factor in the formation of an activated charcoal surface area environment. As the calcination temperature increases, the surface area will increase and decrease as it reaches the optimum point [17].

As indicated in Table 3, the BET results were only applied on three samples with a concentration of 25% H₃PO₄ and 4

hours calcination time at different temperatures. The surface area of the adsorbent produced is still significantly below the standard surface area of activated charcoal, which is roughly 300 - 3500 m²/g [19].

Table 3. BET Results of Activated Charcoal at Different Calcination Temperature

No	Temp (°C)	Surface area (m ² /g)
1	700	28.925
2	800	45.087
3	900	32.172

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

Factor Coding: Actual
 ● Design Points
 26.19 46.94
 X1 = B: Temperature
 X2 = C: Time
Actual Factor
 A: H3PO4 Concentration = 25

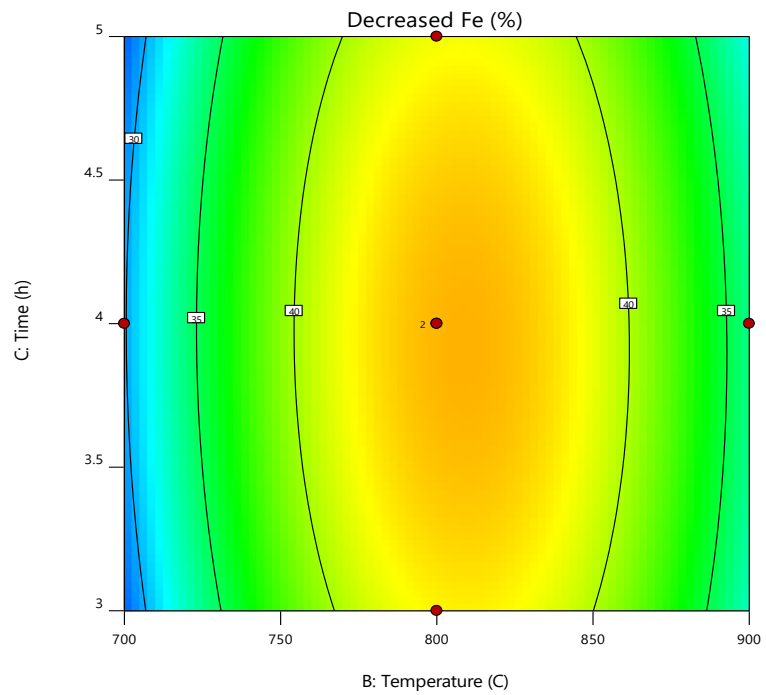


Figure 5. Contour graph of temperature vs calcination time

Factor Coding: Actual
 Design Points:
 ● Above Surface
 ○ Below Surface
 26.19 46.94
 X1 = B: Temperature
 X2 = C: Time
Actual Factor
 A: H3PO4 Concentration = 25

3D Surface

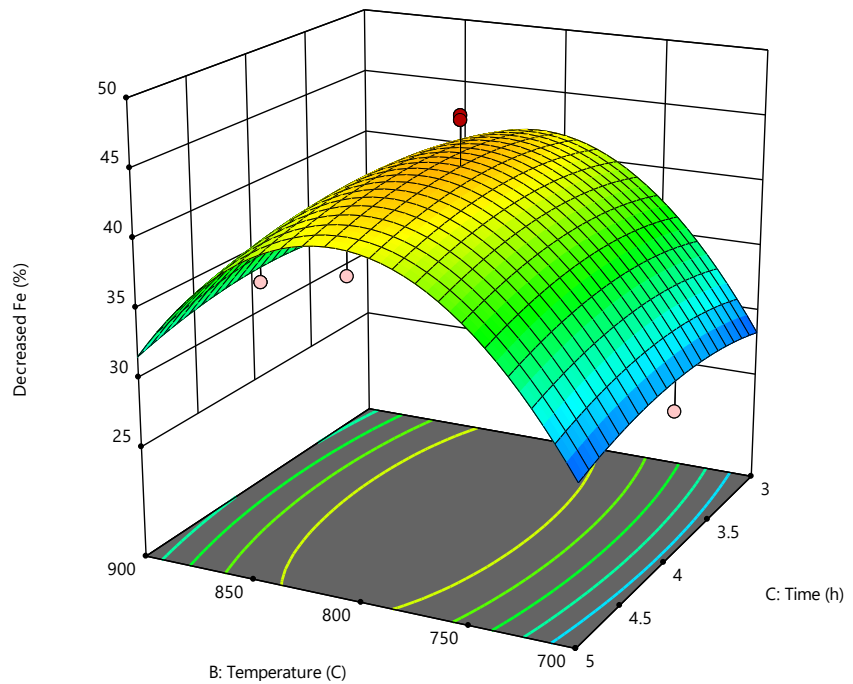


Figure 6. 3D Optimization chart of temperature and calcination time

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

4. Conclusion

This study demonstrated the optimization of activated charcoal synthesis from sugar palm shell using design expert 12.0 software, where the variables used in the activation process include phosphoric acid concentration, calcination temperature, and time. The results showed that the optimal adsorption of Fe ions was obtained under conditions of 25% H₃PO₄ concentration, 800 °C

calcination temperature, and 4 hours calcination time, yielding 46.94% adsorbed Fe. The largest surface area of 45.087% was attained at a calcination temperature of 800 °C. Moreover, further study is required to increase the surface area and adsorption capacity of the adsorbent by varying the activator used.

References

- [1] Apriyani, N. (2018). Industri Batik: Kandungan Limbah Cair dan Metode Pengolahannya. *Media Ilmiah Teknik Lingkungan*, 3(1), 21–29. doi: 10.33084/mitl.v3i1.640
- [2] Hardyanti, I. S., Nurani, I., Septyaningsih, D., Hp, H., Apriliani, E., & Prastyo, E. A. (2017). Pemanfaatan Silika (SiO₂) dan Bentonit sebagai Adsorben Logam Berat Fe pada Limbah Batik. *Jurnal Sains Terapan*, 3(2). doi: 10.32487/jst.v3i2.257
- [3] Connel, D.W.M & Miller, G. J. (1995). *Kimia dan Ekotoksikologi Pencemaran*. Jakarta: UI-Press.
- [4] Haqiqi, E. R. (2018). Studi Awal Kemampuan Adsorpsi Komposit Kulit Telur Ayam dengan Sekam Padi sebagai Adsorben Metil Orange. *CHEESA: Chemical Engineering Research Articles*, 1(1), 15-20. doi: 10.25273/cheesa.v1i1.2623
- [5] Pradhan, S., Shukla, S. S., & Dorris, K. L. (2005). Removal of nickel from aqueous solutions using crab shells. *Journal of Hazardous Materials*, 125(1–3), 201–204. doi: 10.1016/j.jhazmat.2005.05.029
- [6] Desianna, I., Putri, C. A., Yulianti, I., & Artikel, I. (2017). Selulosa Kulit Jagung sebagai Adsorben Logam Cromium (Cr) pada Limbah Cair Batik. *Unnes Physics Journal*, 6(1), 19–24.
- [7] Hartati, I., Widiasmadi, N., Subantoro, R., Kurniasari, L., Darmanto, D. (2016). Penguatan Usaha Pengolah Kolang Kaling di Desa Ngesrebalong Kecamatan Limbangan Kabupaten Kendal. *Momentum*, 17-22. doi: 10.36499/jim.v12i2.1629
- [8] Erawati, E., & Fernando, A. (2018). Pengaruh Jenis Aktivator Dan Ukuran Karbon Aktif Terhadap Pembuatan Adsorbent Dari Serbuk Gergaji Kayu Sengon (Paraserianthes Falcataria). *Jurnal Integrasi Proses*, 7(2), 58. doi: 10.36055/jip.v7i2.3808
- [9] Clinton, D., & Herlina, N. (2015). Pengaruh waktu fermentasi dan komposisi limbah kulit buah aren (*Arenga pinnata*) dengan starter kotoran sapi terhadap. *Jurnal Teknik Kimia USU*, 4(3), 46–51.
- [10] Singh, R. S., Chauhan, K., Kaur, K., & Pandey, A. (2020). Statistical optimization of solid-state fermentation for the production of fungal inulinase from apple pomace. *Bioresource Technology Reports*, 9, 100364. doi: 10.1016/j.biteb.2019.100364
- [11] Hidayat, I. R., Zuhrotun, A., & Sopyan, I. (2020). Design-Expert Software sebagai Alat Optimasi Formulasi Sediaan Farmasi. *Majalah Farmasetika*, 6(1), 99–120. doi: 10.24198/mfarmasetika.v6i1.27842
- [12] Murphy, T. D. (1977). Design and Analysis of Industrial Experiments. *Chemical Engineering*. June: 168-182.
- [13] Burtis, C. A., Bostick, W. D., Overton, J. B., & Mrochek, J. E. (1981) Optimization of a kinetic method by response-surface methodology and centrifugal analysis and application to the enzymic measurement of ethanol. *Analytical Chemistry Journal*, 53, 1154-1159. doi: 10.1021/ac00231a004.
- [14] Cornell, J. A. (1990). *How to Apply Response Surface Methodology*, rev. edition. Milwaukee, WI: American Society for Quality Control.
- [15] Haaland, P. D. (1989). *Experimental Design in Biotechnology*. New York: Marcel Dekker.

Optimization of Activated Charcoal Synthesis from Sugar Palm Shells for the adsorption of Iron Ions in Batik Waste

- [16] Maulinda, L., Za, N., Sari, D. N., Kimia, J. T., Teknik, F., & Malikussaleh, U. (2015). Pemanfaatan Kulit Singkong sebagai Bahan Baku Karbon Aktif. *Jurnal Teknologi Kimia Unimal*, 4(2), 11–19. doi: 10.29103/jtku.v4i2.69.
- [17] Turmuzi, M., & Syaputra, A. (2015). Pengaruh suhu dalam pembuatan karbon aktif dari kulit salak (*Salacca edulis*) dengan impregnasi asam fosfat (H_3PO_4). *Jurnal Teknik Kimia USU*, 4(1), 42–46. doi: 10.32734/jtk.v4i1.1459.
- [18] Husin, A., & Hasibuan, A. (2020). Studi Pengaruh Variasi Konsentrasi Asam Posfat (H_3PO_4) dan Waktu Perendaman Karbon terhadap Karakteristik Karbon Aktif dari Kulit Durian. *Jurnal Teknik Kimia USU*, 9(2), 80–86. doi: 10.32734/jtk.v9i2.3728
- [19] Jamilatun, S., Salamah, S., Isparulita, I. D. (2015). Karakteristik Arang Aktif dari Tempurung Kelapa dengan Pengaktifan H_2SO_4 Variasi Suhu dan Waktu. *Chemica*, 2(1), 13-19.



9 772614 875DD8



Kampus 3 Universitas PGRI Madiun
Jl. Auri No 14-16 Kartoharjo Madiun
Email: cheesa@unipma.ac.id
<http://e-journal.unipma.ac.id/index.php/cheesa>

