

Pengaruh Penambahan Kalsium Karbonat (CaCO_3) dan Natrium Hidroksida (NaOH) Terhadap Sifat Mekanik Geopolimer Berbasis Kaolin

Hudi Nurwendi^a, I Made Bendiyasa^b, Indra Perdana^c

Teknik Kimia, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia

^{a)} Corresponding author: hudi.nurwendi@mail.ugm.ac.id

^{b)} imbendiyasa@ugm.ac.id

^{c)} iperdana@ugm.ac.id

ABSTRACT

The cement production process which relies upon the calcination of limestone at a temperature above 1400°C has a huge amount of carbon dioxide emissions. Development of adhesive media that environmentally friendly is needed to reduce global warming caused by carbon monoxide gas. Geopolymer is one of the more environmentally friendly adhesive media which can substitute ordinary cement. However, the geopolymer is still not widely used as a cement replacement. The reason is that the manufacturing process requires a liquid activator so that the mobilization process is difficult. In this study, the end result of the geopolymer is in the form of powder and "just adding water" in the application process similar to cement. Another problem is that the geopolymer needs to be cured at a temperature of 40-100°C within 24-17 hours. The addition of calcium carbonate to improve the mechanical properties of the geopolymer cured at room temperature. The addition of calcium carbonate has an effect on geopolymer mechanical properties, the largest increase in the amount of calcium carbonate by 15%, carbonate increases the compressive strength up to 14 MPa after curing at room temperature for 28 days. The addition of the activator concentration also improves the mechanical properties of the geopolymer.

Keywords: geopolymer, kaolin, calcium carbonat, dry process

ABSTRAK

Produksi semen yang bergantung dengan proses kalsinasi batu kapur pada suhu diatas 1400°C memiliki emisi gas karbon dioksida yang sangat besar. Pemngembangan media perekat yang lebih ramah lingkungan diperlukan dalam upaya mengurangi pemanasan global yang disebabkan oleh gas karbon dioksida. Geopolimer merupakan bahan yang lebih ramah lingkungan sehingga dapat digunakan sebagai pengganti semen. Tetapi geopolimer belum banyak digunakan secara luas sebagai bahan pengganti semen. Penyebabnya adalah proses pembuatan yang memerlukan aktivator cair sehingga proses mobilisasinya sulit dilakukan. Dalam studi ini, hasil akhir geopolymer berupa serbuk dan "hanya menambahkan air" atau geopolimer satu bagian dengan menggunakan aktivator padat. Permasalahan lain, geopolymer perlu dilakukan proses curing dengan suhu 40-100°C dalam waktu 24-17 jam. Penambahan kalsium karbonat ditujukan untuk meningkatkan sifat mekanik geopolimer yang di-curing pada suhu kamar. Penambahan kalsium karbonat memiliki pengaruh sifat mekanik geopolimer, peningkatan terbesar pada jumlah kalsium karbonat sebanyak 15%, kalsium karbonat meningkatkan kuat tekan hingga 14 MPa setelah proses curing pada suhu ruang selama 28 hari. Penambahan konsentrasi aktivator juga meningkatkan sifat mekanik geopolimer.

Kata kunci: geopolimer; kaolin; kalsium karbonat; proses kering

1. PENDAHULUAN

Kebutuhan semen portland terus meningkat seiring meningkatnya pembangunan di era modern ini. Pembangunan tidak dapat dihindari bahkan cenderung terus meningkat, permasalahannya semen Portland kurang ramah terhadap lingkungan yang disebabkan oleh besarnya emisi gas karbon dioksida (CO_2). Gas tersebut dihasilkan dari proses kalsinasi kapur (Persamaan 1) dan pembakaran batu bara dalam proses pembuatan klinker pada semen Portland (Zhao et al, 2016; Hökfors et al., 2015)). Pada tahun 2016, sebanyak 1.45 ± 0.20 Gt

emisi gas CO₂ atau sekitar 8% dari total emisi CO₂ dihasilkan dari industri semen Portland (Schneider et al., 2011).

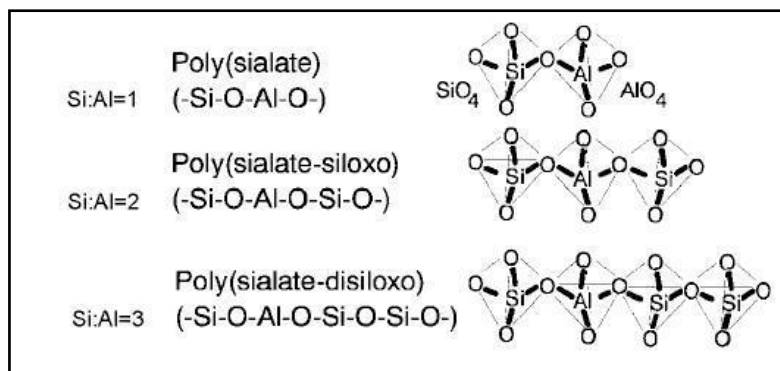


Gas CO₂ merupakan gas rumah kaca yang dapat menyebabkan meningkatnya suhu di bumi. Dalam rangka mengurangi pemanasan global, 195 negara termasuk Indonesia melakukan kesepakatan Paris pada Konferensi Perubahan Iklim PBB ke-21. Kesepakatan tersebut bertujuan untuk laju peningkatan suhu rata-rata global di bawah 2 derajat Celsius (Streck et al., , 2016). Sebagai salah satu upaya tersebut, diperlukan pengganti bahan baku beton yang lebih ramah lingkungan. Salah satu material yang memiliki kualifikasi tersebut adalah geopolimer.

Karakteristik geopolimer merupakan gabungan antara polimer anorganik dan keramik (Kirschner dan Harmuth, 2004). Geopolimer lebih tahan terhadap asam dibandingkan dengan semen *Portland*, sehingga dapat aplikasikan pada kondisi dengan pH rendah. Sebagaimana ditunjukkan oleh pengujian terhadap asam dimana sampel direndam di dalam 5 asam sulfat dan asam klorida, semen geopolimer relatif stabil dengan kehilangan berat hanya sekitar 5-8%, sementara itu semen *Portland* menunjukkan kehilangan berat sebesar 30-60% (Davidovits, 1994).

Pengujian termal tes telah dilakukan antara semen *portland* dengan geopolimer. Pengujian tersebut dilakukan dengan uji tekan pada sampel beton geopolimer dan beton semen *portland* yang terkena suhu tinggi yang diikuti oleh kondisi pendinginan ringan dan ekstrim baik menggunakan pendingin udara maupun air, penelitian tersebut menemukan bahwa beton geopolimer memiliki kuat tekan yang lebih baik daripada beton semen *portland* ketika mengalami tes kejutan termal. Sehingga geopolimer dapat diterapkan dalam kondisi di mana ada risiko kebakaran yang lebih tinggi yang akan memerlukan pendinginan langsung dengan air (Nazari et al., 2019). Dari sifat tersebut pemanfaatan geopolimer bisa lebih luas, salah satunya sebagai pelapis tahan panas material yang tahan suhu tinggi yang tidak dapat dipenuhi oleh semen biasa.

Geopolimer disintesis dari bahan dasar yang berupa senyawa alumina-silika dengan aktivator yang berupa larutan alkali hidroksida. Alumina dan silika yang larut oleh alkali akan menghasilkan monomer Si(OH)₄ dan Al(OH)₄ selanjutnya terpolikondensasi menjadi polimer alkali aluminosilikat. Geopolimer merupakan polimer anorganik dengan yang terbentuk dari atom Si dan Al yang tersusun dalam jaringan tiga dimensi sebagaimana pada Gambar 1 (Davidovits, 1994).



Gambar 1. Struktur jaringan 3 dimensi geopolimer (Davidovits, 1994)

Saat ini geopolimer belum banyak dimanfaatkan sebagai produk komersial yang disebabkan oleh alkali aktivator yang berupa larutan. Geopolimer disintesis dengan mereaksikan larutan aktivator yang berupa larutan alkali hidroksida pekat dengan prekursor alumino silikat padat. Selanjutnya, campuran tersebut dicampur dengan agregat dan air untuk dijadikan beton geopolimer (Provis dan Van Deventer, 2009). Proses ini tidak efisien jika diaplikasikan dan dijadikan produk komersial yang disebabkan oleh alkali aktivator yang bersifat korosif dan berupa larutan. Untuk itu diperlukan metode lain agar geopolimer dapat diaplikasikan seperti semen portland dengan hanya menambahkan air.

Penelitian terhadap pencampuran kering pada geopolimer telah dilakukan. Dimulai dari Koloušek dkk (Koloušek et al., 2007) dengan mengkalsinasi kaolin berkualitas rendah dengan alkali hidroksida pada 550°C selama 4 jam selanjutnya dicampur dengan agregat selayaknya semen *portland*. Tetapi hasil dari kalsinasi tersebut masih menunjukkan kuat tekan yang rendah (<1 MPa) setelah 7 hari. Selanjutnya, Feng et al., (2012) mencampurkan albite, natrium hidroksida (NaOH) dan natrium karbonat (Na₂CO₃). Campuran tersebut menghasilkan kuat tekan lebih dari 40 MPa pada masa *curing* 28 hari. Peng et al., (2014) mengkalsinasi kaolin berkualitas rendah dengan 25% NaOH dengan suhu *curing* 80°C selama 72 jam menghasilkan kuat tekan 63 MPa.

Curing dengan suhu antara 40-100 °C selama 24-72 jam diperlukan untuk meningkatkan geopolimer.. Proses ini memerlukan biaya tambahan dan tidak praktis jika diaplikasikan. Cao et al (2018) menambahkan kalsium yang berasal kalsium aluminat pada geopolimer abu terbang untuk meningkatkan sifat mekanik yang di-*curing* pada suhu kamar. Penambahan tersebut dapat meningkatkan sifat mekanik pada geopolimer abu terbang.

Berdasarkan penelitian-penelitian beton geopolimer umumnya menggunakan metode basah, dimana material pengikatnya berupa suatu campuran antara larutan alkali dan kaolin sebagai sumber aluminosilikat. Hasil dari proses basah masih sulit untuk dijadikan produk komersial yang disebabkan oleh alkali aktivator yang berupa larutan sehingga tidak efisien. Proses yang dilakukan oleh (Peng et al., 2014) merupakan proses kering, yaitu dengan membuat geopolimer hanya perlu ditambah air untuk dijadikan beton, tetapi masih diperlukan proses *curing*. Proses *curing* merupakan perlakuan setelah geopolimerisasi untuk

mendapatkan sifat mekanik yang kuat dengan cara menaikkan suhu pada waktu tertentu. Kebaruan penelitian ini adalah proses sintesis geopolimer dengan proses kering berbasis kaolin dengan menambahkan kalsium karbonat. Prekursor geopolimer yang didapatkan dari proses ini berupa serbuk sehingga untuk aplikasinya hanya dengan menambah air seperti semen biasa tanpa *curing* dengan suhu tinggi.

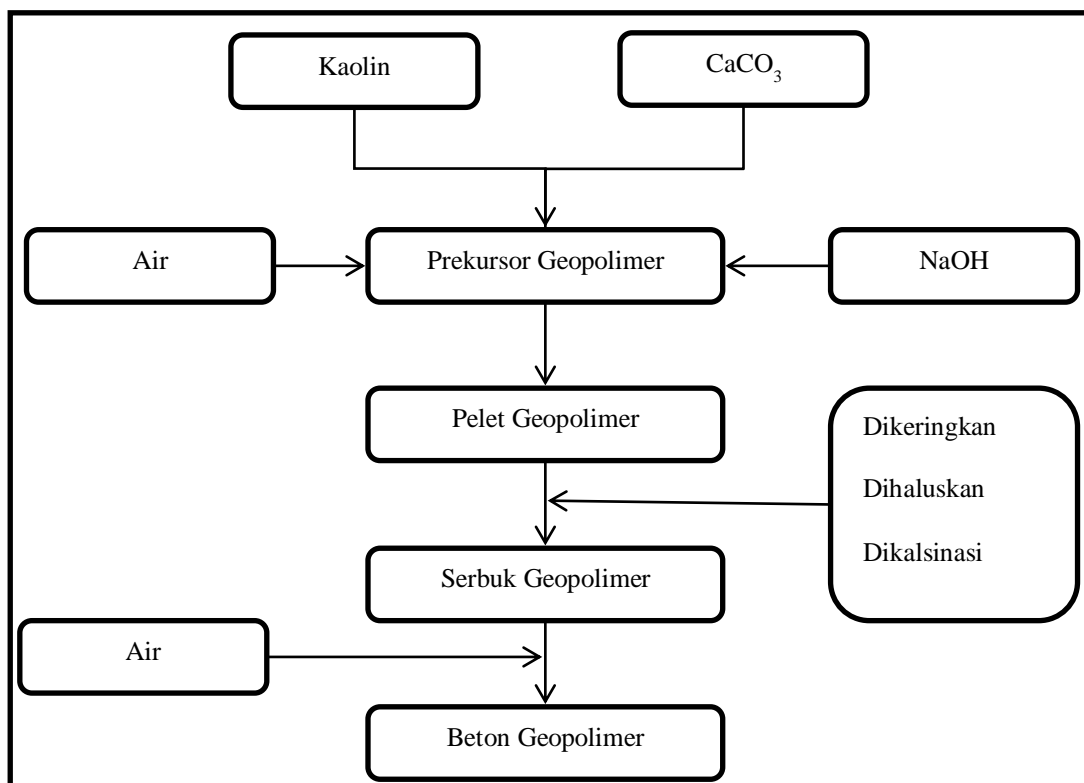
2. METODE

a. Material

Material pada penelitian ini menggunakan kaolin dari PT Stepa Wirausaha Adiguna, NaOH padat teknis dengan kemurnian 70% yang diperoleh dari CV General Labora dan kalsium karbonat dari PT. Dwi Selo Giri Mas.

b. Metode

Sampel kaolin dan kalsium karbonat dikeringkan dengan oven untuk menghilangkan kandungan air selanjutnya dimilling menggunakan ball mill selama 1 jam. Sampel yang sudah dimilling kemudian diayak dengan shieve 300 mesh, produk oversize dimilling kembali. Selanjutnya kaolin diuji dengan menggunakan XRF mengetahui komposisinya. Tahapan penelitian dilaksanakan berdasarkan Gambar 2.



Gambar 2 Diagram Alur Percobaan

Tahap pertama dalam pencampuran bahan yaitu dengan membuat variasi kaolin dengan kalsium karbonat. Kaolin dengan kalsium karbonat dicampur dengan penambahan

kalsium kalsium karbonat 10% 15% dan 20% dari berat total kaolin sehingga didapatkan sampel campuran kaolin-kalsium karbonat. Campuran tersebut ditambahkan dengan natrium hidroksida (NaOH) sebanyak 20% dari total berat.

Tahap kedua yaitu pembuatan pasta geopolimer dan proses kalsinasi. Campuran kaolin-kalsium karbonat-natrium hidroksida tersebut ditambahkan air sebanyak 0,5 dari berat campuran tersebut, yang selanjutnya hasil ini disebut pellet geopolimer. Pelet tersebut selanjutnya dikeringkan untuk menghindari kandungan air.

Pelet yang sudah kering digiling halus hingga 300 mesh. Serbuk geopolimer tersebut selanjutnya dikalsinasi hingga 500°C selama 2 jam dengan heating rate 10°C/menit dan didinginkan sampai suhu ruangan. Setelah dingin, serbuk geopolimer tersebut dicetak pada kubus 5x5x5 cm dan diuji kuat tekan.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

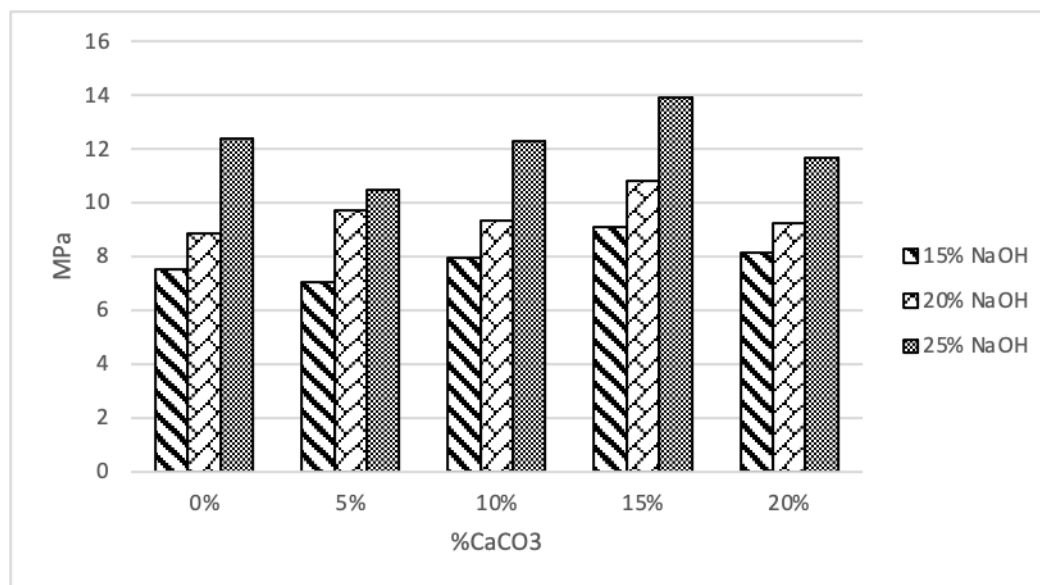
Analisis XRF bahan baku digunakan untuk mengetahui kandungan mineral dalam kaolin. Hasil XRF dapat dilihat dalam Tabel 1 berikut:

Tabel 1. Komposisi Oksida Kaolin

Mineral	%wt
SiO ₂	53,6
Al ₂ O ₃	37,2
P ₂ O ₅	0,73
K ₂ O	2,74
CaO	0,81
TiO ₂	0,52
V ₂ O ₅	0,04
Fe ₂ O ₃	3,51
CuO	0,12
Rb ₂ O	0,21
ZnO	0,02
NiO	0,5

Komposisi kimiawi (disajikan pada Tabel 3.1) menunjukkan bahwa kaolin sebagian besar terdiri dari silika dan alumina dengan kadar total 69,4% berat, dengan perbandingan berat silika terhadap aluminium oksida. Kaolin tersebut memiliki kandungan kalsium dibawah 1%.

Hasil uji kuat tekan dari laboratorium untuk pasta geopolimer dilakukan pada saat pasta geopolimer diberi perlakuan *curing* selama 28 hari pada temperatur ruang. *Curing* yang dimaksud pada penelitian ini adalah proses pengerasan pasta geopolimer. Data yang diperoleh dari mesin uji adalah beban maksimum yang mampu diterima benda uji sebelum mengalami kegagalan.



Gambar 3. Kuat Tekan dari Berbagai Variasi Penambahan Aktivator NaOH dan Kalsium Karbonat

Secara umum penambahan aktivator NaOH meningkatkan sifat mekanik geopolymer berbasis kaolin. Nilai tertinggi pada komposisi kalsium karbonat 15% dengan 25% aktivator NaOH yaitu 14 MPa. Sedangkan nilai terendah pada komposisi 5% kalsium Karbonat dengan aktivator NaOH 15%.

Peranan alkali aktivator sangat penting pada proses geopolimerisasi dalam melarutkan silika dan alumina. Alkali aktivator berfungsi sebagai penyedia kation alkali. Kation alkali inilah yang akan melepaskan monomer-monomer silika dan alumina dari partikel kaolin (Heah et al., 2012). Semakin tinggi konsentrasi alkali yang digunakan maka jumlah kation alkali yang dihasilkan juga semakin banyak seperti pada **Gambar 3**. Dengan jumlah kation alkali yang semakin banyak maka laju pelarutan monomer-monomer silika dan alumina akan semakin tinggi. Dengan semakin cepat tahap destruksi monomer silika alumina, maka akan semakin cepat tahapan-tahapan reaksi geopolimer selanjutnya seperti tahap polikondensasi dan tahap stabilisasi. Peningkatan kekuatan geopolimer akan meningkat secara signifikan ketika menggunakan alkali aktivator dengan konsentrasi yang tinggi.

Mekanisme geopolimerisasi sangat bergantung dari alkali aktivator. Proses terbentuknya geopolymer meliputi pelarutan aluminosilikat padat menjadi monomer-monomer silika dan alumina pada larutan alkali kuat. Proses tersebut dilanjutkan dengan terbentuknya oligomer Si dan atau Si-Al pada fasa cair yang diikuti dengan polikondensasi spesies atau unit oligomer dalam fasa air untuk membentuk bahan polimer anorganik. Tahap terakhir terjadinya ikatan padatan yang tidak terlarut (Dimas et al., 2009). Sehingga proses geopolimerisasi sangat bergantung pada alkali aktivator.

Penambahan kalsium karbonat memiliki pengaruh sifat mekanik geopolymer, peningkatan terbesar pada jumlah kalsium karbonat sebanyak 15%, kalsium karbonat

meningkatkan kuat tekan hingga 14 MPa. Kalsium karbonat yang ditambahkan dapat bereaksi dengan silika (dalam natrium silikat) membentuk hidrat $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (C-A-S-H). Pembentukan hidrat tersebut dapat menyebabkan reduksi air dalam medium basa, menghasilkan medium alkalinitas yang lebih tinggi, oleh karena itu meningkatkan disolusi spesies Si dan Al (Hoyos et al., 2018).

Penambahan kalsium karbonat menurun pada konsentrasi yang lebih tinggi seperti pada gambar 3.1. Penurunan kuat tekan sambil menambahkan lebih banyak kalsium karbonat ke sistem geopolimer dapat disebabkan oleh destabilisasi gel $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-H}_2\text{O}$ melalui pembentukan hidrat C-A-S-H (pada medium dengan alkalinitas tinggi) (Garcia et al., 2011).

4. KESIMPULAN

Penambahan kalsium karbonat dapat meningkatkan kuat tekan pada geopolimer berbasis kaolin. Kondisi optimum pada sintesis geopolimer berbasis kaolin ini adalah dengan konsentrasi NaOH 25% dan Kalsium Karbonat 15% yaitu dengan kuat tekan 14 MPa. Penambahan kalsium karbonat dapat meningkatkan sifat mekanik geopolimer berbasis kaolin pada proses curing suhu ruang. Peningkatan tersebut disebabkan oleh terbentuknya hidrat $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$, tetapi jika terlalu banyak justru menurunkan kuat tekan yang disebabkan oleh destabilisasi gel $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-H}_2\text{O}$.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih diucapkan kepada Bapak Himawan Tri Bayu dan Bapak Teguh Arianto yang telah memberi banyak masukan terhadap penelitian ini, juga teman-teman Teknik Kimia Universitas Gadjah Mada yang tidak bisa saya sebutkan satu-persatu yang telah banyak membantu penyelesaian penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- Cao, Y. F., Tao, Z., Pan, Z., & Wuhrer, R. (2018). Effect of calcium aluminate cement on geopolymer concrete cured at ambient temperature. *Construction and Building Materials*, 191, 242–252. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.09.204>
- Davidovits, J. (1994). PROPERTIES OF GEOPOLYMER CEMENTS Joseph Davidovits Geopolymer Institute, 02100 Saint-Quentin, France. *Alkaline Cements and Concretes, KIEV Ukraine*, 1–19. <https://doi.org/10.1073/pnas.0811322106>
- Dimas, D., Giannopoulou, I., & Pania, D. (2009). Polymerization in sodium silicate solutions: A fundamental process in geopolymerization technology. *Journal of Materials Science*, 44(14), 3719–3730. <https://doi.org/10.1007/s10853-009-3497-5>
- Feng, D., Provis, J. L., & Van Deventer, J. S. J. (2012). Thermal activation of albite for the synthesis of one-part mix geopolymers. *Journal of the American Ceramic Society*, 95(2), 565–572. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2011.04925.x>
- Garcia-Lodeiro, I., Palomo, A., Fernández-Jiménez, A., & MacPhee, D. E. (2011). Compatibility studies between N-A-S-H and C-A-S-H gels. Study in the ternary diagram $\text{Na}_2\text{O-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$. *Cement and Concrete Research*, Vol. 41.

- <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.05.006>
- Heah, C. Y., Kamarudin, H., Mustafa Al Bakri, A. M., Bnhussain, M., Luqman, M., Khairul Nizar, I., ... Liew, Y. M. (2012). Study on solids-to-liquid and alkaline activator ratios on kaolin-based geopolymers. *Construction and Building Materials*, 35, 912–922. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.04.102>
- Hökfors, B., Boström, D., Viggh, E., & Backman, R. (2015). On the phase chemistry of Portland cement clinker. *Advances in Cement Research*, 27(1), 50–60. <https://doi.org/10.1680/adcr.13.00071>
- Hoyos-Montilla, A. A., Puertas, F., & Tobón, J. I. (2018). Microcalorimetric study of the effect of calcium hydroxide and temperature on the alkaline activation of coal fly ash. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 131(3). <https://doi.org/10.1007/s10973-017-6715-4>
- Kirschner, A. V., & Harmuth, H. (2004). Investigation of geopolymer binders with respect to their application for building materials. *Ceramics - Silikaty*.
- Koloušek, D., Brus, J., Urbanova, M., Andertova, J., Hulinsky, V., & Vorel, J. (2007). Preparation, structure and hydrothermal stability of alternative (sodium silicate-free) geopolymers. *Journal of Materials Science*, 42(22), 9267–9275. <https://doi.org/10.1007/s10853-007-1910-5>
- Nazari, A., Bagheri, A., Sanjayan, J. G., Dao, M., Mallawa, C., Zannis, P., & Zumbo, S. (2019). Thermal shock reactions of Ordinary Portland cement and geopolymer concrete : Microstructural and mechanical investigation. *Construction and Building Materials*, 196, 492–498. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.11.098>
- Peng, M. X., Wang, Z. H., Shen, S. H., & Xiao, Q. G. (2014). Synthesis, characterization and mechanisms of one-part geopolymeric cement by calcining low-quality kaolin with alkali. *Materials and Structures/Materiaux et Constructions*, 48(3), 699–708. <https://doi.org/10.1617/s11527-014-0350-3>
- Provis, J. L., & Van Deventer, J. S. J. (2009). Geopolymers: Structures, processing, properties and industrial applications. In *Geopolymers: Structures, Processing, Properties and Industrial Applications*. <https://doi.org/10.1533/9781845696382>
- Schneider, M., Romer, M., Tschudin, M., & Bolio, H. (2011). Cement and Concrete Research Sustainable cement production — present and future. *Cement and Concrete Research*, 41(7), 642–650. Retrieved from <http://dx.doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.03.019>
- Streck, C., Keenlyside, P., & Von Unger, M. (2016). The Paris agreement: A new beginning. *Journal for European Environmental and Planning Law*, 13(1), 3–29. <https://doi.org/10.1163/18760104-01301002>
- Zhao, J., Cai, G., Degée, H., Huang, B., & Luo, Z. (2016). Hydration, setting and crack-resistance properties of activated HVFACs at early stages. *Applied Sciences (Switzerland)*, 6(8). <https://doi.org/10.3390/app6080224>