

PEMANFAATAN LIMBAH ABU DASAR BATUBARA SEBAGAI BAHAN DASAR SINTESIS ZEOLIT DAN APLIKASINYA SEBAGAI ADSORBEN LOGAM BERAT Cu (II)

Murniati, Nurul Hidayat, Mudasir

Jurusan Kimia Universitas Gadjah Mada Yogyakarta

E-mail: murni-kim07@yahoo.com

ABSTRAK

Telah dilakukan penelitian tentang pemanfaatan limbah abu dasar batubara PLTU Paiton sebagai bahan dasar sintesis zeolit untuk adsorpsi logam Cu (II) dan hasilnya dibandingkan dengan adsorpsi oleh abu dasar. Kajian yang dilakukan meliputi sintesis dan karakterisasi dan kajian adsorpsi Cu (II). Sintesis zeolit dilakukan melalui peleburan abu dasar batubara dengan NaOH pada 550 °C selama 1 jam yang dilanjutkan dengan reaksi hidrotermal dalam larutan basa pada 100 °C dengan penambahan natrium silikat. Karakterisasi zeolit hasil sintesis dilakukan dengan menggunakan difraksi sinar-X (XRD) dan spektrofotometer inframerah (FTIR). Analisis jumlah Cu (II) yang teradsorpsi oleh adsorben menggunakan spektrofotometer serapan atom (AAS).

Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa zeolit dapat di sintesis dari abu dasar batubara yang ditandai dengan adanya nilai d dari analisis difraksi sinar-X yang spesifik untuk zeolit yang didominasi oleh zeolit Na-P. Karakterisasi dengan spektrofotometer inframerah menunjukkan adanya gugus-gugus fungsi pembangun kerangka zeolit. Kondisi optimum adsorpsi 10 mL Cu (II) 10 ppm oleh abu dasar dan zeolit hasil sintesis dicapai pada waktu kontak berturut-turut pada menit ke-30 dan ke-90. Konsentrasi optimum abu dasar dan zeolit hasil sintesis dicapai pada 100 dan 80 ppm. Parameter kinetika adsorpsi menunjukkan bahwa konstanta laju adsorpsi Cu (II) oleh abu dasar dan zeolit hasil sintesis adalah berturut-turut $4 \times 10^{-5} \text{ menit}^{-1}$ dan $6 \times 10^{-4} \text{ menit}^{-1}$. Besarnya konstanta kesetimbangan Cu (II) abu dasar dan zeolit hasil sintesis adalah berturut-turut $6101 \text{ mol}^{-1}\text{L}$ dan $6957 \text{ mol}^{-1}\text{L}$. Parameter adsorpsi isothermal menunjukkan kapasitas adsorpsi Cu (II) untuk zeolit hasil sintesis ($1,0 \times 10^{-5} \text{ mol/g}$) lebih besar daripada abu dasar ($6,9 \times 10^{-6} \text{ mol/g}$). Tetapan kesetimbangan adsorpsi Cu (II) untuk zeolit hasil sintesis (34141 L/mol) lebih besar dari abu dasar (4793 L/mol). Proses adsorpsi oleh Cu (II) diduga melibatkan adsorpsi kimia (kemisorpsi) dengan energi adsorpsi untuk zeolit berturut-turut adalah 26,04 kJ/mol dan 21,14 kJ/mol.

Kata kunci: abu dasar batubara, zeolit, adsorben, tembaga (II).

PENDAHULUAN

Batubara merupakan bahan bakar yang banyak digunakan di PLTU. Pembakaran batubara akan menghasilkan limbah padat yang berupa abu yakni abu terbang (*fly ash*) dan abu dasar (*bottom ash*). Partikel abu yang terbawa gas buang disebut abu terbang, sedangkan abu yang tertinggal dan dikeluarkan dari bawah tungku disebut abu dasar. Sebagian besar abu terbang dan abu dasar dikumpulkan dalam pembuangan abu (*ash disposal*). Keberadaan limbah batubara ini di satu sisi menimbulkan masalah lingkungan, karena limbah abu batubara ini digolongkan sebagai limbah B3. Limbah abu batubara mengandung sejumlah logam berat, seperti Zn^{2+} , Cd^{2+} , Pb^{2+} , dan beberapa logam berat lainnya (Penila dkk, 2003). Namun, di sisi lain banyak dimanfaatkan sebagai bahan penyusun beton, bahan baku keramik, aditif dalam pengolahan limbah (*waste stabilization*), konversi menjadi zeolit dan adsorben.

Beberapa peneliti telah melaporkan bahwa komponen utama penyusun abu batubara adalah silika (SiO_2) dan alumina (Al_2O_3) (Ahn dkk, 2006; Chang dan Shih, 1998; Ojha dkk, 2004; Sunarti, 2008). Komponen penyusun abu batubara tersebut hampir mirip dengan komponen penyusun zeolit, sehingga

salah satu alternatif pemanfaatan abu batubara yang bernilai jual tinggi serta mengurangi dampak buruknya terhadap lingkungan adalah dengan mengubahnya menjadi zeolit.

Berbagai jenis zeolit telah berhasil disintesis dari abu batubara, salah satunya adalah zeolit Na-P. Zeolit Na-P merupakan zeolit sintesis dengan kristal berbentuk kubik dan mempunyai sifat sebagai penyaring molekuler dan penukar kation yang tinggi sehingga dimanfaatkan secara luas dalam industri (Ahn dkk, 2006; Querol dkk, 2002). Ahn dkk (2006), yang telah melakukan sintesis zeolit dari abu dasar melalui metode reaksi hidrotermal dalam larutan alkali dengan variasi temperatur 80-150 °C dan variasi konsentrasi 1-5 M. Zeolit yang dihasilkan adalah zeolit Na-P, hidroksi-sodalit dan tobermorit. Zeolit Na-P memiliki kapasitas penukar kation yang paling tinggi. Sunarti (2008) juga telah melakukan optimasi sintesis zeolit Na-P dari abu dasar batu bara dengan kombinasi metode peleburan NaOH, perlakuan hidrotermal serta penambahan natrium aluminat dan natrium silikat. Zeolit Na-P digunakan bahan adsorben logam berat Pb^{2+} .

Dengan adanya kemampuan adsorpsi dan penukar ion yang tinggi dari zeolit Na-P, maka difikirkan untuk mensintesis zeolit dari abu dasar batu bara yang memiliki kandungan mineral silika (SiO_2) dan alumina (Al_2O_3) yang sangat tinggi sebagai bahan dasar sintesis. Metode sintesis zeolit Na-P pada penelitian ini merupakan modifikasi dari metode sintesis zeolit secara umum dari abu dasar batu bara yang telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya, yaitu melalui reaksi peleburan abu dasar dengan NaOH yang dilanjutkan dengan reaksi hidrotermal dengan penambahan natrium silikat. Zeolit Na-P hasil sintesis dapat digunakan sebagai penukar kation dan adsorben logam berat.

Salah satu logam berat adalah tembaga (Cu). Tembaga termasuk ke dalam logam berat esensial artinya meskipun Cu merupakan logam berat beracun, logam ini dalam jumlah tertentu sangat dibutuhkan oleh organisme. Toksisitas dari logam Cu baru akan bekerja dan memperlihatkan pengaruhnya bila logam ini telah masuk kedalam tubuh organisme dalam jumlah besar atau melebihi nilai ambang batasnya (Manahan, 2005). Sumber pencemaran Cu dalam air minum berasal dari korosi pipa-pipa yang digunakan dalam sistem distribusi air. Pada konsentrasi tinggi, Cu memberikan rasa tidak sedap pada air minum. Beberapa gejala keracunan Cu adalah sakit perut, mual, muntah, diare, dan beberapa kasus yang parah dapat menimbulkan dampak seperti kerusakan otak, pengendapan, penurunan fungsi ginjal, tembaga (Cu) dalam kornea mata dan kematian (Darmono, 1995).

Mengingat bahaya yang ditimbulkan oleh tembaga, maka dilakukan upaya untuk mengurangi kandungan tembaga dalam limbah perairan yaitu dengan memanfaatkan limbah abu dasar batubara dan zeolit hasil sintesis yang diketahui memiliki kemampuan adsorpsi, penyaring molekuler dan penukar ion terhadap logam berat khususnya logam berat tembaga (Cu).

Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis zeolit dari abu dasar batubara melalui reaksi peleburan dengan padatan NaOH yang dilanjutkan dengan perlakuan hidrotermal dengan penambahan natrium silikat, kemudian zeolit yang diperoleh digunakan untuk adsorpsi logam Cu (II) serta mempelajari adsorpsi dan faktor-faktor yang mempengaruhi adsorpsi, kinetika dan energi adsorpsi ion Cu (II) oleh zeolit sintesis dan abu dasar batubara.

METODE PENELITIAN

Alat: Peralatan gelas, bejana teflon, neraca analitik, Furnace, oven, lumpang porselin, krus nikel, shaker, pH meter, kertas saring, ayakan, Spektrofotometer Inframerah, Difraktometer Sinar-X (XRD), dan Spektrofotometer Serapan Atom (SSA).

Bahan: Abu dasar batubara, NaOH, Larutan natrium silikat, $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, kalium hidrogen ftalat (KHP), kalium dihidrogen fosfat (KH_2PO_4), HCl, akuabides, dan akudes.

Jalan penelitian:

Preparasi abu dasar batubara: Sampel abu dasar yang berasal dari PLTU Paiton Probolinggo Jawa Timur ditumbuk dan digerus menggunakan lumpang dan mortar porselen kemudian dikeringkan pada suhu $100\text{ }^\circ\text{C}$ selama 2 jam. Setelah kering, abu dasar di ayak dengan ayakan 250 mesh. Karakterisasi abu dasar hasil preparasi menggunakan spektrofotometer inframerah (IR) dan difraksi sinar-X (XRD).

Sintesis zeolit: Sintesis zeolit dilakukan dengan cara peleburan abu dasar yang diikuti dengan reaksi hidrotermal dengan penambahan natrium silikat. Proses Peleburan dilakukan dengan cara mencampurkan 2,5 gram abu dasar dan 2,5 gram NaOH ($r = 1,0$) kemudian digerus menggunakan lumpang porselin selama 15 menit, dimasukkan dalam krus nikel lalu dilebur pada suhu $550\text{ }^\circ\text{C}$ selama 60 menit. Abu dasar yang diperoleh dari hasil peleburan dengan NaOH, dimasukkan dalam bejana teflon, ditambahkan 10 ml natrium silikat dan 15 ml akuades kemudian diaduk dengan pengaduk magnet selama 24 jam. Hasil peleburan tersebut kemudian di hidrotermal pada suhu $100\text{ }^\circ\text{C}$ selama 24 jam. Padatan hasil hidrotermal dipisahkan dengan kertas saring, dinetralkan dengan aquades dan dikeringkan dalam oven pada suhu $100\text{ }^\circ\text{C}$ selama 1 jam. Hasil pengeringan yang diperoleh di ayak dengan ayakan 250 mesh untuk memastikan homogenitas ukuran partikel zeolit yang diperoleh selanjutnya digunakan sebagai adsorben. Selanjutnya di karakterisasi menggunakan spektrofotometer inframerah dan difraksi sinar-X (XRD).

Adsorpsi ion Cu (II) oleh adsorben: Proses adsorpsi dilakukan dengan mempelajari pengaruh waktu kontak dan konsentrasi larutan. Sebanyak 10 mL larutan Cu (II) 10 ppm diinteraksikan 25 mg adsorben pada waktu dan konsentrasi bervariasi kemudian digojok dengan *shaker* selama 60 menit. Campuran disaring dengan kertas saring dan konsentrasi ion Cu (II) dalam filtrat di tentukan dengan spektrofotometer serapan atom. Hasil adsorpsi logam ion Cu (II) dibandingkan antara kedua adsorben.

Untuk menentukan kinetika adsorpsi dilakukan dengan cara mengolah data adsorpsi pada variasi waktu kontak dengan menggunakan persamaan Langmuir dan untuk mengetahui kapasitas dan konstanta kesetimbangan dapat diperoleh dengan mengolah data variasi konsentrasi awal ion logam Cu (II) menggunakan model adsorpsi Langmuir-Heinshelwood.

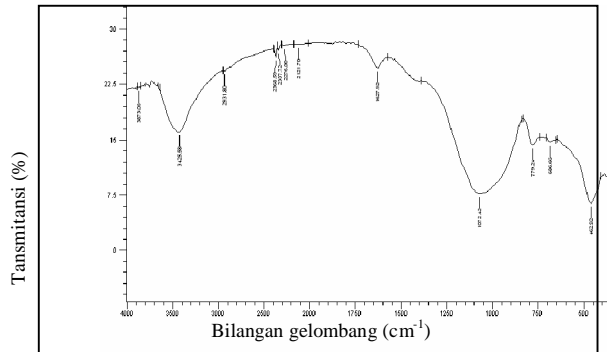
HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi abu dasar dengan spektrofotometer infra merah (IR)

Karakterisasi abu dasar menggunakan spektrofotometer inframerah (IR) bertujuan untuk mengetahui gugus-gugus fungsi dan jenis vibrasi antar atom dalam abu dasar.

Berdasarkan spektra inframerah pada Gambar 1 menunjukkan adanya serapan pada bilangan gelombang $3425,58\text{ cm}^{-1}$ dan $1627,92\text{ cm}^{-1}$ merupakan daerah serapan vibrasi rentang dan tekuk -OH dari gugus Si-OH. Pita serapan yang melebar pada bilangan gelombang $1072,42\text{ cm}^{-1}$ merupakan serapan vibrasi rentangan asimetris O-Si-O/O-Al-O, sedangkan pita serapan yang lemah pada bilangan gelombang $779,24\text{ cm}^{-1}$ merupakan serapan rentangan simetris ikatan O-Si-O/O-Al-O. Serapan pada bilangan gelombang $462,92$ merupakan vibrasi yang menunjukkan adanya ikatan Si-O/Al-O. Serapan inframerah abu dasar menunjukkan keberadaan vibrasi karakteristik Si dan Al sebagai satuan tetrahedral (TO_4) yang merupakan struktur satuan primer pembangun zeolit, namun Si dan Al pada abu dasar belum tersusun sebagai

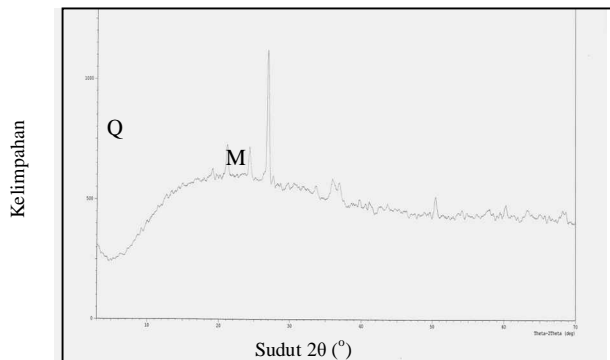
satuan kerangka zeolit. Hal ini ditunjukkan dengan munculnya serapan yang melebar dan relatif lemah.



Gambar 1. Spektra inframerah abu dasar PLTU Paiton.

Karakterisasi abu dasar dengan difraksi sinar-X (XRD)

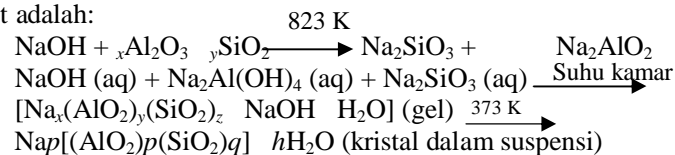
Pada difraktogram yang disajikan dalam Gambar 2 terlihat bahwa silika dan alumina sebagai unsur-unsur utama dalam abu dasar berada dalam fasa kristalin yaitu alam bentuk kuarsa (SiO_2) dan mullit ($2\text{SiO}_2 \cdot 3\text{Al}_2\text{O}_3$). Selain fasa kristalin dan mullit, abu dasar juga tersusun oleh oksida-oksida silika dan aluminat yang bersifat amorf, sebagaimana ditunjukkan oleh munculnya pola difraksi yang melebar pada daerah $2\theta = 10\text{-}30^\circ$. Keberadaan serapan lebar tersebut membuat *baseline* abu dasar menjadi naik.



Gambar 2. Difraktogram sinar-X (XRD) abu dasar PLTU Paiton. (Q = kuarsa dan M = mullit).

Sintesis Zeolit

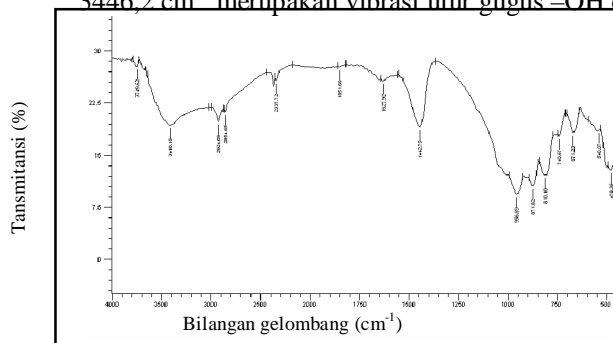
Sintesis zeolit dari abu dasar batubara pada penelitian dilakukan dengan melalui beberapa tahapan yaitu perlakuan awal abu dasar, dekomposisi abu dasar dengan NaOH yang dilanjutkan dengan perlakuan hidrotermal dengan penambahan natrium silikat. Reaksi yang berlangsung pada proses sintesis zeolit adalah:



Dekomposisi abu dasar dengan metode peleburan dengan NaOH

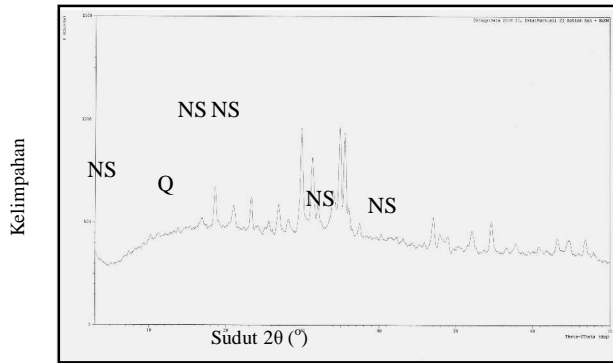
Peleburan abu dasar dengan NaOH bertujuan untuk mendekomposisi komponen silika-alumina menjadi natrium silikat dan natrium aluminat (Chang dan Shih, 1998; Shigemoto et al, 1993).

Spektra inframerah pada Gambar 3 menunjukkan pita serapan yang sempit pada bilangan gelombang $956,69 \text{ cm}^{-1}$ yang merupakan pita serapan rentangan asimetris O-Si-O/O-Al-O. Penyempitan pita serapan rentang asimetri pada padatan hasil peleburan diperkirakan berhubungan dengan bertambah homogenya bentuk spesies Si dan Al menjadi natrium silikat dan natrium alumina. Pita serapan baru muncul dengan intensitas yang lemah pada bilangan gelombang $671,32$; $740,67$; $810,10$; $871,62 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi eksternal rentangan simetri O-Si-O/O-Al-O. Serapan-serapan tersebut cenderung memisah, hal ini kemungkinan disebabkan oleh terbentuknya spesies-spesies silikat dan aluminat akibat pemanasan pada suhu tinggi dan suasana basa pada saat peleburan. Hal ini diperkuat dengan daerah serapan ikatan Si-O/Al-O yang mengalami pergeseran kearah bilangan gelombang yang lebih tinggi yaitu $478,35 \text{ cm}^{-1}$. Pita serapan baru pada hasil leburan muncul pada bilangan gelombang sekitar $1456,2 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi tekuk Al-O bebas. Diperkirakan leburan NaOH menyebabkan terjadinya pemutusan spesies Si dan Al pada abu dasar menjadi spesies kecil yang tidak berbentuk polimer. Pita serapan baru juga muncul pada bilangan gelombang $1627,5 \text{ cm}^{-1}$ yang merupakan vibrasi tekuk O-H. Pita serapan pada bilangan gelombang sekitar $3446,2 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi ulur gugus -OH dari molekul H_2O .



Gambar 3. Spektra inframerah abu dasar hasil peleburan dengan rasio berat NaOH/abu dasar = 1,0.

Hasil analisis difraksi sinar-X pada Gambar 4, menunjukkan terjadinya perubahan puncak-puncak abu dasar menjadi natrium silikat. Puncak kuarsa masih muncul pada $2\theta = 26,6^\circ$ dengan kuantitas puncak yang relatif kecil, yang menunjukkan bahwa hanya sebagian kecil kuarsa yang tidak berubah dengan adanya peleburan dan ini memberikan informasi bahwa proses peleburan berlangsung cukup efektif mengubah mineral silika dan alumina menjadi natrium silikat dan natrium aluminat yang reaktif.



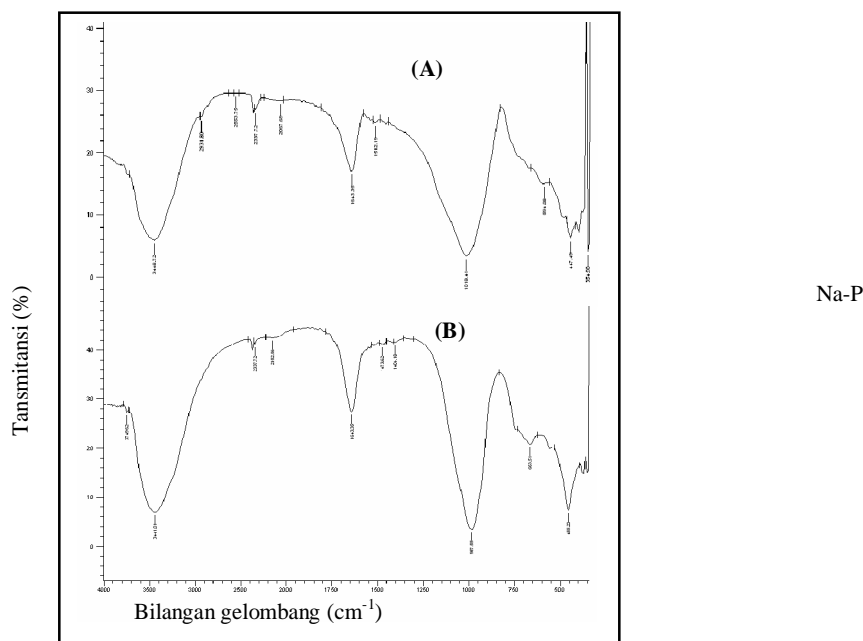
Gambar 4. Difraktogram sinar-X (XRD) abu dasar hasil peleburan dengan rasio berat NaOH/abu dasar = 1,0. (Q = kuarsa, dan NS = Natrium silikat).

Penambahan Natrium Silikat dan Reaksi Hidrotermal

Penambahan natrium silikat dalam penelitian ini dilakukan untuk mendapatkan zeolit yang lebih homogen. Hasil karakterisasi zeolit dengan spektrofotometer Inframerah ditunjukkan pada Gambar 5.

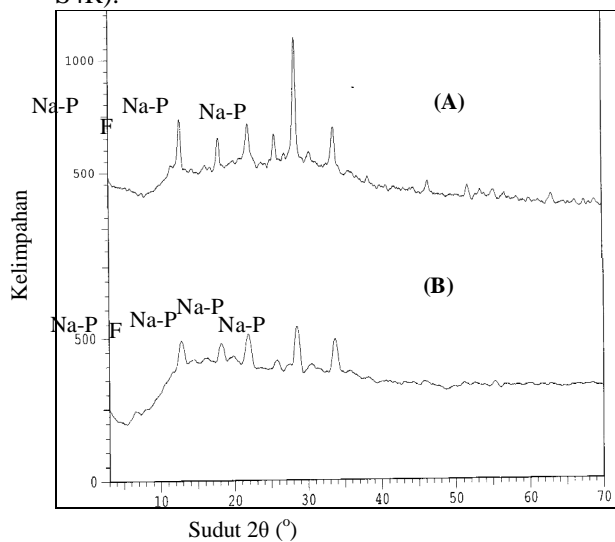
Pada Gambar 5 menunjukkan bahwa pola serapan pada kedua spektra tidak jauh berbeda. Spektra inframerah pada zeolit hasil sintesis tanpa penambahan natrium silikat menunjukkan pita serapan yang tajam pada bilangan gelombang $967,55 \text{ cm}^{-1}$ dan zeolit hasil sintesis dengan penambahan natrium silikat muncul serapan yang melebar dan mengalami pergeseran pada bilangan gelombang yang lebih $1018,41 \text{ cm}^{-1}$ merupakan daerah serapan vibrasi rentangan asimetris O-Si-O dan O-Al-O. Adanya pita serapan yang lebar dan pergeseran bilangan gelombang pada zeolit hasil sintesis dengan penambahan natrium silikat menunjukkan bahwa rasio Si/Al semakin tinggi dalam padatan hasil dan diduga semakin banyak gugus silanol yang terbentuk. Pita serapan pada daerah bilangan gelombang $593,21 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil sintesis tanpa penambahan natrium silikat mengalami pergeseran bilangan gelombang menjadi $594,08 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil dengan penambahan natrium silikat, merupakan daerah vibrasi yang karakteristik untuk zeolit Na-P, hal ini sesuai dengan pernyataan Balkus dkk (1991), bahwa serapan pada bilangan gelombang sekitar 600 cm^{-1} merupakan serapan rentang simetris eksternal karakteristik untuk zeolit Na-P.

Pita serapan pada bilangan gelombang $447,49 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil sintesis dengan penambahan natrium silikat dan $455,20 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil tanpa penambahan natrium silikat merupakan daerah vibrasi tekuk Si-O/Al-O. Selain itu tampak juga pita serapan pada bilangan gelombang $354,90$ pada zeolit hasil dengan penambahan natrium silikat dan pada $362,62 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil tanpa penambahan natrium silikat yang menunjukkan adanya vibrasi pori terbuka. Pita serapan pada bilangan gelombang $1635,64 \text{ cm}^{-1}$ pada zeolit hasil sintesis dengan penambahan natrium silikat dan pada zeolit hasil sintesis tanpa penambahan natrium silikat merupakan daerah vibrasi tekuk -OH dari gugus silanol, sedangkan serapan yang muncul pada bilangan gelombang $3448,72 \text{ cm}^{-1}$ pada penambahan natrium silikat dan $3425,58 \text{ cm}^{-1}$ tanpa penambahan natrium silikat menunjukkan adanya vibrasi rentangan gugus -OH dari Si-OH.



Gambar 5 Spektra inframerah zeolit hasil sintetis dengan penambahan natrium silikat (A) dan zeolit hasil sintetis tanpa penambahan natrium silikat (B).

Berdasarkan hasil analisis difraksi sinar-X menunjukkan harga sudut (2θ) dan d -space pada zeolit hasil sintetis tanpa penambahan natrium silikat hampir sama dengan zeolit hasil sintetis dengan penambahan natrium silikat, tetapi pada zeolit hasil sintetis dengan penambahan natrium silikat intensitas puncak semakin meningkat atau kristalinitas zeolit yang dihasilkan semakin tinggi. Hal ini disebabkan karena penambahan natrium silikat akan meningkatkan konsentrasi silikat dalam reaktan. Komposisi sistem hidrotermal dengan kandungan silikat yang tinggi menyukai pembentukan zeolit Na-P (Breck, 1974). Di sisi lain semakin banyak NaOH yang dibutuhkan untuk melarutkan silika. Zeolit Na-P memiliki kandungan sel satuan dengan rumus kimia $\text{Na}_6[(\text{AlO}_2)_6(\text{SiO}_2)_{10} \cdot 15\text{H}_2\text{O}]$ termasuk dalam klasifikasi zeolit golongan 1 yaitu zeolit dengan satuan pembangun sekunder cincin-4-tunggal (single 4-ring, S4R).

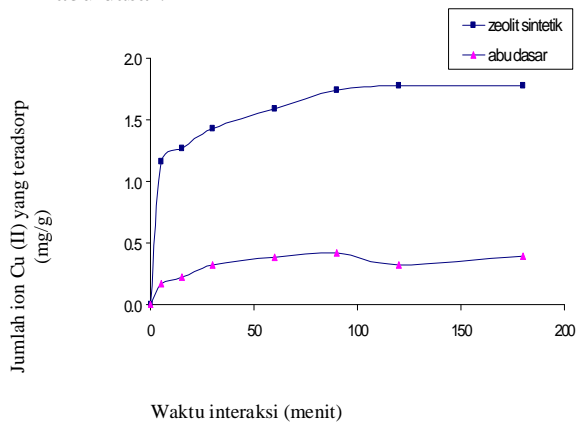


Gambar 6 Difraktogram sinar-X (XRD) zeolit hasil sintesis dengan penambahan natrium silikat (A) dan zeolit hasil sintesis tanpa penambahan natrium silikat (B).

Kajian Adsorpsi ion Cu (II)

Kemampuan adsorpsi zeolit hasil sintesis dipelajari dengan mengamati pengaruh pH larutan, waktu kontak dan konsentrasi awal. Hasil pengamatan pengaruh pH seperti tertera dalam Gambar 7 menunjukkan kemampuan zeolit hasil sintesis untuk mengadsorpsi Cu (II) lebih besar jika dibandingkan dengan abu dasar. Hal ini dapat dijelaskan bahwa kemampuan abu dasar untuk mengadsorpsi ion Cu (II) yang diduga dapat terjadi karena adanya gugus-gugus aktif seperti silanol dan aluminol dalam mengikat ion logam. Pada zeolit hasil sintesis, proses adsorpsi ion Cu (II) tidak hanya melibatkan gugus-gugus aktif zeolit saja, tetapi juga dapat terjadi melalui mekanisme pertukaran kation. Ion Na^+ dalam zeolit sebagai penyeimbang kerangka zeolit dapat digantikan oleh ion Cu (II). Fenomena lain mungkin terjadi dalam proses adsorpsi ion Cu (II) adalah melalui pemerangkapan ion logam dalam pori baik pada zeolit hasil sintesis maupun pada abu dasar.

Dari gambar tersebut terlihat bahwa jumlah ion Cu (II) yang dapat diadsorpsi oleh zeolit hasil sintesis selalu lebih besar jika dibandingkan dengan abu dasar.



Gambar 7 Kurva pengaruh waktu interaksi terhadap adsorpsi ion Cu (II) oleh zeolit hasil sintesis dan abu dasar.

Pola adsorpsi yang terbentuk pada zeolit hasil sintesis dan abu dasar relatif sama. Hanya saja pada zeolit hasil sintesis pada awal waktu kontak yaitu 5 menit pertama jumlah ion Cu (II) yang teradsorpsi meningkat secara signifikan, kemudian relatif konstan setelah menit ke-90. Sedangkan pada abu dasar kenaikan adsorpsi Cu (II) pada awal adsorpsi terjadi secara perlahan-lahan dan kemudian relatif konstan pada menit ke-30. Tercapainya kondisi optimum ini menunjukkan telah kesetimbangan dalam interaksi antara ion-ion logam dalam larutan dengan gugus-gugus aktif pada permukaan adsorben. Perbedaan waktu optimum ini diduga karena pada zeolit hasil sintesis untuk mencapai kesetimbangan diperlukan waktu yang lebih lama, hal ini tidak hanya terjadi pada gugus-gugus aktif dan pori saja, juga karena terjadinya pertukaran ion antara ion Na^+ dengan ion Cu^{2+} , sehingga waktu yang diperlukan untuk mencapai kesetimbangan lebih lama. Dari data yang diperoleh, selanjutnya diolah untuk menentukan besaran-besaran kinetika adsorpsi yaitu k dan K,

dengan menggunakan model kinetika adsorpsi Langmuir-Heinshelwood sebagaimana yang tertera pada Tabel 1.

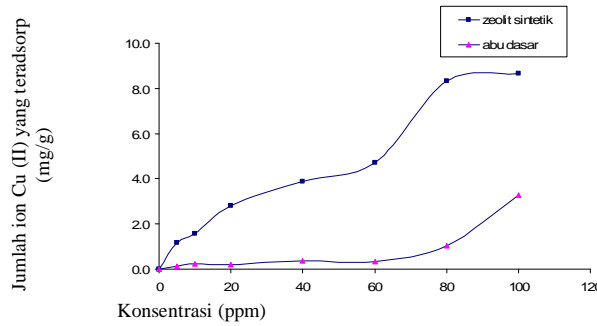
Tabel 1. Parameter kinetika adsorpsi Langmuir-Heinshelwood pada adsorpsi ion Cu (II) dengan adsorben zeolit hasil sintetis dan abu dasar.

| Parameter kinetika Langmuir-Heinshelwood | | | |
|--|--------------------------------------|---|----------------|
| Adsorben | Laju adsorpsi (menit ⁻¹) | Tetapan kesetimbangan (mol ⁻¹ L) | Linearitas (r) |
| Zeolit | 6×10^{-4} | 6957 | 0,9926 |
| Abu dasar | 4×10^{-5} | 6101 | 0,9256 |

Pada data yang disajikan terlihat bahwa nilai tetapan laju adsorpsi (k) dan konstanta kesetimbangan (K) untuk zeolit hasil sintetis lebih besar dibandingkan dengan abu dasar. Hal ini disebabkan karena pada zeolit hasil sintesis, proses adsorpsi ion Cu (II) tidak hanya melalui pemerangkapan ion logam dalam pori dan adanya gugus-gugus aktif saja, tetapi juga dapat terjadi melalui mekanisme pertukaran kation.

Hasil penelitian pengaruh konsentrasi disajikan pada Gambar 9. Pada Gambar tersebut terlihat bahwa kedua adsorben memberikan pola adsorpsi yang sama dalam mengadsorpsi ion logam Cu (II), yaitu semakin besar konsentrasi awal ion logam, maka jumlah ion logam yang diadsorpsi juga semakin besar sampai pada konsentrasi tertentu, kemudian menjadi konstan pada konsentrasi berikutnya yang lebih besar. Hal ini terjadi karena ion-ion logam dalam larutan akan menempati situs-situs aktif pada adsorben, semakin besar konsentrasi ion logam dalam larutan maka akan semakin banyak situs-situs aktif pada adsorben yang ditempati oleh ion-ion logam dan ion logam Cu (II) yang mengalami pertukaran ion semakin banyak kemudian mencapai suatu kondisi optimum jika semua situs aktif yang terdapat pada permukaan adsorben telah terisi oleh ion logam. Pada keadaan ini interaksi yang terjadi berada dalam keadaan setimbang, sehingga bila penambahan konsentrasi ion logam maka tidak akan mengakibatkan perubahan yang berarti pada jumlah ion logam yang diadsorpsi oleh adsorben.

Pada proses adsorpsi yang dilakukan oleh zeolit hasil sintetis (Gambar 9), terlihat bahwa pada konsentrasi pada konsentrasi 5 sampai 10 ppm proses adsorpsi berjalan lambat, sedangkan pada konsentrasi diatas 10 ppm proses adsorpsi yang terjadi berlangsung cepat sampai mencapai kondisi optimum pada konsentrasi 80 ppm. Hal ini terjadi karena dengan meningkatnya konsentrasi ion Cu (II), maka jumlah ion logam Cu (II) yang mengalami pertukaran dengan ion Na⁺ semakin banyak dan interaksi yang terjadi antara ion logam dalam larutan dengan gugus-gugus aktif juga semakin besar. Berbeda dengan proses adsorpsi yang dilakukan dengan abu dasar terlihat bahwa pada konsentrasi 5 sampai 60 ppm adsorpsi berjalan lambat, sedangkan pada konsentrasi 80 sampai 100 ppm masih terus mengalami kenaikan. Hal ini mungkin terjadi karena gugus-gugus aktif pada abu dasar belum terlalu banyak dan tidak adanya pertukaran ion yang terjadi.



Gambar 9 Pengaruh konsentrasi awal Cu (II) terhadap jumlah ion Cu (II) yang teradsorpsi oleh zeolit hasil sintesis dan abu dasar.

Besaran-besaran termodinamika yaitu kapasitas adsorpsi, tetapan kesetimbangan adsorpsi dan energi adsorpsi dapat ditentukan dengan menerapkan model isoterm adsorpsi Langmuir-Heinshelwood. Berdasarkan data yang terdapat pada Tabel 2 terlihat bahwa kapasitas adsorpsi dan tetapan kesetimbangan adsorpsi Cu (II) menggunakan zeolit hasil sintesis lebih besar jika dibandingkan dengan menggunakan abu dasar. Hal tersebut menunjukkan bahwa dengan melakukan sintesis zeolit pada abu dasar ternyata dapat meningkatkan kemampuan adsorpsi, yang dapat dilihat dari meningkatnya kapasitas adsorpsi zeolit hasil sintesis karena dengan bertambahnya situs-situs aktif pada zeolit dan adanya kemampuan zeolit menukarkan ion Na^+ dengan ion logam Cu^{2+} .

Tabel 2. Parameter adsorpsi isotermal Langmuir pada adsorpsi Cu (II) dengan adsorben zeolit hasil sintesis dan abu dasar.

| Parameter Adsorpsi Isotermal Langmuir | | | |
|---------------------------------------|----------------------|-----------|--------------------------|
| Adsorben | Kapasitas (mol/g) | K (L/mol) | Energi adsorpsi (kJ/mol) |
| Zeolit | $1,0 \times 10^{-5}$ | 34141 | 26,04 |
| Abu dasar | $6,9 \times 10^{-6}$ | 4793 | 21,14 |

Adsorpsi yang terjadi dapat berupa interaksi secara fisika (*fisiosorpsi*) atau berupa interaksi secara kimia (*kemisorpsi*) atau mungkin kedua-duanya. Berdasarkan hasil penelitian dan perhitungan yang dilakukan diperoleh adsorpsi Cu (II) oleh zeolit hasil sintesis sebesar $1,0 \times 10^{-5}$ kJ/mol dan untuk abu dasar sebesar $6,9 \times 10^{-6}$ kJ/mol. Dari hasil tersebut terlihat bahwa energi adsorpsi untuk kedua adsorben lebih besar dari 20,92 kJ/mol, maka sebagaimana dijelaskan oleh Adamson (1990), maka adsorpsi ion Cu (II) baik dengan adsorben zeolit hasil sintesis maupun abu dasar dapat dikategorikan kedalam adsorpsi kimia (*kemisorpsi*).

KESIMPULAN

Zeolit dapat disintesis dari abu dasar batubara melalui reaksi peleburan dengan NaOH pada suhu hidrotermal dengan penambahan natrium silikat. Kondisi optimum adsorpsi ion Cu (II) oleh abu dasar adalah pada waktu kontak 30 menit dan konsentrasi awal Cu (II) 100 ppm, sedangkan untuk zeolit hasil sintesis pada waktu kontak 90 menit dan konsentrasi awal Cu (II) 80 ppm. Berdasarkan parameter kinetika adsorpsi yang dievaluasi menggunakan model kinetika adsorpsi Langmuir-Heinshelwood bahwa konstanta laju (k) untuk zeolit hasil sintesis adalah 6×10^{-4} menit⁻¹ dan konstanta kesetimbangan (K) adalah 6956,9 mol⁻¹L, lebih besar dibandingkan pada abu dasar dengan konstanta laju (k) adalah 4×10^{-5} menit⁻¹ dan konstanta kesetimbangan (K)

adalah $6101,0 \text{ mol}^{-1}\text{L}$, yang menunjukkan bahwa laju adsorpsi dan kemampuan adsorpsi zeolit hasil sintetis terhadap ion Cu (II) lebih besar dibandingkan pada abu dasar. Parameter-parameter adsorpsi isotermal yang dievaluasi dengan menggunakan adsorpsi isotermal model Langmuir menunjukkan bahwa kapasitas adsorpsi, konstanta kesetimbangan adsorpsi dan energi adsorpsi zeolit hasil sintetis lebih besar dibandingkan pada abu dasar yang menunjukkan bahwa kemampuan zeolit hasil sintetis untuk mengadsorpsi Cu (II) lebih besar dibandingkan pada abu dasar, tetapi adsorpsi oleh kedua adsorben termasuk adsorpsi secara kimia (*kemisorpsi*).

SARAN

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut mengenai adsorpsi ion Cu (II) dalam sampel limbah yang terdapat di lingkungan, sehingga keefektifan adsorben ini untuk menyerap logam berat yang terdapat di lingkungan dapat diketahui.

DAFTAR PUSTAKA

- Adamson, A. W., 1990, *Physical Chemistry of Surface*, edisi ke-5, John Wiley and Sons Inc., New York.
- Ahn, W.J., Han, C.G., You, S.K., and Um, N.I., 2006, Zeolite Synthesis from Coal Bottom Ash for Recycling as an Adsorbent of Heavy Metal, *Material Science Forum Vols.* 510-511.
- Balkus, K.J.J and Kieu, T.L., 1991, The Preparation and Characterization of an X-Tipe Zeolite, *J. Chem. Edu.*, 68 (10), 857-877.
- Breck, D. W., 1974, *Zeolite Molecular Sieve: Structure, Chemistry and Use*, John Wiley and Sons Inc, New York.
- Chang, H.L., and Shih W.H., 1998, A General Method for the Conversion of Fly Ash into Zeolites as Ion Exchangers for Cesium, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 39, 4185 – 4191.
- Darmono, 1995, *Logam dan Sistem Biologi Mahluk Hidup*, UI-Press, Jakarta.
- Manahan, S.E., 2005, *Environmental Chemistry*, 7th Edition. Lewis Publisher, United States of America.
- Ojha, K., Pradhan, N.C., and Samanta, A.N., 2004, Zeolite from Fly Ash: Synthesis and Characterization, *J. Mater. Sci.*, Vol. 27, No. 6, 555–564.
- Penilla, R.P, Bustos, A.G., and Elizalde S.G, 2003, Zeolite Synthesized by Alkaline Hydrothermal Treatment of Bottom Ash from Combustion of Municipal Solid Wastes, *J. Am. Ceram. Soc.*, 86 (9), 1527–33.
- Querol X., Moreno, J.C., Umana, J.C., Alastuey, A., Hernandez, E., Lopez-Soler, A., and Plana, F., 2002, Synthesis of Zeolites Coal From Fly Ash; an overview. Elsevier, *International Journal of Coal Geologi*, 50, 413-423
- Sunarti, 2008, Sintesis Zeolit dari Abu Dasar Batubara dan Aplikasinya sebagai Adsorben Logam Berat Timbal Pb (II), Tesis Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta.