



## ADSORPSI ZAT WARNA METHYL ORANGE MENGUNAKAN ZEOLIT DARI ABU DASAR BATUBARA

Lina Kamalia, Khamidinal, Imelda Fajriyati, Didik Krisdiyanto\*

Program Studi Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi UIN Sunan Kalijaga Yogyakarta  
Jl. Marsda Adisucipto Yogyakarta 55281 Telp. +62-274-540971  
Email: didik\_kris@yahoo.com\*

**Abstrak.** Telah dilakukan penelitian adsorpsi zat warna methyl orange menggunakan zeolit abu dasar batubara. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui karakteristik zeolit hasil sintesis dan kesetimbangan adsorpsi, kinetika adsorpsi dan termodinamika adsorpsi zeolit terhadap pewarna methyl orange. Karakterisasi gugus fungsional zeolit menggunakan Spektrofotometer FT-IR dan kristalinitas menggunakan Difraktometer Sinar-X. Kajian adsorpsi zeolit terhadap methyl orange dilakukan pada variasi pH methyl orange range 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7 dan 8, variasi waktu kontak adsorpsi yaitu 1, 2, 3, 4, 5, 10, 15, 20, 25, 35, 45, 55, 65, 75, 85, 95, 105, 115, 125, dan 135 menit, variasi konsentrasi yaitu 10, 20, 50, dan 100 mg/L dan variasi temperatur yaitu 28, 35, 45, dan 55 0C. Hasil karakterisasi sintesis zeolit dari abu dasar batubara menggunakan karakterisasi X-Ray Diffraction dan Fourier Transform Infra Red menunjukkan bahwa zeolit hasil sintesis mempunyai struktur material zeolit faujasit yang ditunjukkan dengan puncak utama yaitu 6,2940; 26,8950; dan 31,1900. Adsorpsi zeolit terhadap methyl orange terjadi pada pH 2, kesetimbangan adsorpsi cenderung mengikuti pola isotherm Freundlich dengan kapasitas adsorpsi (n) yaitu  $2,392 \times 10^{-3}$  mol/L dan konstanta Freundlich (K) yaitu  $1,803 \times 10^{-4}$  mol/g. Kinetika adsorpsi cenderung mengikuti pseudo orde dua dengan nilai konstanta laju reaksi (k) yaitu 1,866 (g/mg min) dan kapasitas adsorpsi (qe) yaitu 10,341. Termodinamika adsorpsi membuktikan bahwa pembentukan sistem adsorpsi adsorben dengan adsorbat bersifat spontan ditunjukkan dengan nilai  $\Delta G_0$  (8.825,652 KJ/mol),  $\Delta H_0$  (-0,2485 KJ/mol), dan  $\Delta S_0$  (+29,058 KJ/mol).

**Kata kunci:** Abu dasar, adsorpsi, methyl orange

This publication is licensed  
under a



### Pendahuluan

Perkembangan ilmu pengetahuan dan teknologi memberikan banyak keuntungan bagi kehidupan manusia namun efek yang ditimbulkan memberikan dampak negatif bagi lingkungan sekitarnya, misalnya masalah limbah industri. Limbah industri yang dibuang secara bebas di perairan tanpa mengalami pengolahan terlebih dahulu akan mencemari lingkungan diantaranya pada limbah industri tekstil (Mahatmanti, 2003).

Umumnya proses industri tekstil akan menghasilkan limbah zat warna non-biodegradable (Wijaya dkk., 2006). Zat warna yang terkandung dalam limbah industri tekstil tersebut diantaranya methyl orange. Zat warna methyl orange ini sangat berbahaya karena dapat menyebabkan alergi, iritasi kulit, serta kanker (Cahyadi, 2006). Peneliti terdahulu pernah melakukan penelitian tentang menanggulangi limbah zat warna dengan metode koagulasi, penukar ion, dan ozonasi. Akan tetapi dengan metode tersebut membutuhkan biaya yang relatif tinggi dalam pengoperasiannya (Widhiyanti, 2010).

Metode adsorpsi merupakan salah satu metode yang paling sering digunakan untuk pengolahan limbah cair terutama menghilangkan zat warna. Bahan yang dapat dimanfaatkan sebagai adsorben dalam proses adsorpsi adalah limbah dari abu dasar batubara (Kartika dkk., 2009).

Abu batubara merupakan materi sisa yang ada setelah semua materi yang dapat bakar (flameable) pada batubara telah habis terbakar (Hessley dkk., 1986).

Oleh karena itu abu batubara merupakan campuran yang kompleks sebagai hasil perubahan kimia komponen batubara yang berlangsung selama pembakaran. Setelah pembakaran,

batubara menghasilkan dua macam limbah yaitu limbah abu layang dan limbah abu dasar. Limbah abu dasar dan abu layang merupakan salah satu limbah abu buangan dari hasil proses pembakaran batubara (Pratiwi, 2010).

Limbah abu layang adalah abu hasil transformasi, peleburan dari material anorganik yang terkandung dalam abu batubara, sedangkan limbah abu dasar adalah bahan buangan dari proses pembakaran batubara pada tungku (boiler) yang apabila dibiarkan sebagai limbah akan menjadi bahan beracun dan polutan. (Molina dan Poole, 2004). Dibandingkan abu layang, abu dasar ini relatif kurang pemanfaatannya. Oleh karena itu abu dasar ini dapat dimanfaatkan sebagai bahan sintesis zeolit. Abu dasar yang memiliki komponen kimia sebagian besar berfasa amorf sekitar 66-88% dan fasa kristalinitasnya adalah silika (SiO<sub>2</sub>) 45,4% dan Alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 19,3%. (Yanti dkk., 2009).

Ditinjau dari komposisi kimia yang dikandungnya, dimungkinkan untuk memanfaatkan abu dasar sebagai bahan baku bagi pembuatan bahan-bahan aluminosilikat yang memiliki banyak kegunaan. Salah satu bahan aluminosilikat adalah zeolit yang banyak digunakan sebagai penyaring molekul (molecular sieve), penyerap kation serta katalis (Yanti dkk., 2009). Dalam praktek kehidupan sehari-hari zeolit digunakan sebagai bahan pembuatan adsorben. Zeolit dipandang lebih unggul dari bahan lain karena memiliki kestabilan termal yang tinggi. Struktur kristalnya berpori dan luas permukaan yang besar. (Karmila, 2006).

Berdasarkan paparan diatas, pada penelitian ini akan dilakukan sintesis dan karakterisasi zeolit dari abu dasar batubara sebagai adsorben untuk mengadsorpsi zat warna methyl orange.

Proses adsorpsi dipengaruhi oleh beberapa faktor diantaranya pH, kesetimbangan adsorpsi, kinetika reaksi dan termodinamika adsorpsi.

## Bahan dan Metode

### Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan antara lain: abu dasar batubara, aluminium foil, NaOH (p.a), zat warna Methyl Orange (p.a) merk (C<sub>14</sub>H<sub>14</sub>N<sub>3</sub>NaO<sub>3</sub>S), dan akuades, Bahan habis pakai yaitu kertas pH dan kertas saring Whatman No.42.

### Peralatan Penelitian

Alat-alat yang digunakan antara lain yaitu: peralatan gelas, bejana teflon 25 mL, penyaring buchner, lumpang porselen, pH meter, corong, oven, neraca analitik, cawan porselen, magnetic stirrer, ayakan 230 mesh, furnace, shaker, X-Ray Diffraction (XRD) Shimadzu 6000, Spektrofotometer UV-Vis, Spektronic 20 D Thermo Electron Corporation, dan Fourier Transform Infra Red (FT-IR) Thermo Nicolet Avatar 360.

### Metode Penelitian

#### Pembuatan Zeolite dari Abu Dasar Batubara

Sampel abu dasar yang masih berupa batuan yang berasal dari Pabrik Spiritus Madukismo dihaluskan dengan cara ditumbuk dan digerus menggunakan lumpang dan mortar porselen. Setelah halus, abu dasar diayak dengan ayakan yang berukuran 230 mesh. Langkah selanjutnya adalah pengeringan abu dasar. Abu dasar dikeringkan pada temperatur 105°C selama 2 jam, kemudian dilanjutkan dengan sintesis zeolit berdasarkan reaksi peleburan alkali hidrotermal.

Sintesis zeolit dilakukan dengan cara peleburan abu dasar yang diikuti dengan reaksi alkali hidrotermal. Proses peleburan dilakukan dengan cara mencampurkan 1 gram abu dasar dan 1,2 gram NaOH pelet (1:1,2) kemudian digerus menggunakan lumping porselen selama 5 menit, dimasukkan dalam krus nikel dan dilebur pada temperatur 550°C selama 60 menit. Abu dasar yang diperoleh dari hasil peleburan dengan NaOH dimasukkan dalam wadah plastik, ditambahkan 10 mL akuades kemudian diaduk dengan pengaduk magnet selama 24 jam. Hasil peleburan tersebut kemudian dimasukkan dalam reaktor hidrotermal (autoclave stainlesssteel) pada temperatur 100°C selama 24 jam. Padatan hasil hidrotermal dipisahkan dengan kertas saring, dinetralkan dengan akuades dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 100°C selama 1 jam. Padatan tersebut ditimbang dan dikarakterisasi menggunakan spektrofotometer FTIR untuk mengetahui gugus fungsi dan Difraksi Sinar-X untuk mengetahui kristalinitas padatan.

#### Adsorpsi Methyl Orange dengan Zeolite dari Abu Dasar

Sejumlah 50 mL larutan methyl orange dengan variasi pH dari 1-8. Pengaturan pH ini dengan penambahan NaOH 1 M dan HCl 1 M dan dilakukan pada suhu ruang, masing-masing ditambahkan ke dalam adsorben zeolit sintesis 0,25 g dengan konsentrasi 100 ppm. Campuran kemudian dimasukkan ke dalam erlenmeyer 100 mL dilakukan pada temperatur ruang. Kemudian di shaker selama 6 jam pada kecepatan 170 rpm. Larutan di sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 3000

rpm dan filter dianalisis menggunakan spektrometri 20 D pada panjang gelombang 464 nm.

Percobaan ini dilakukan dengan cara mengambil 50 mL larutan methyl orange dengan variasi konsentrasi 10, 20, 50 dan 100 ppm, masing-masing ditambahkan ke dalam adsorben zeolit sintesis 0,25 g. Campuran kemudian dimasukkan ke dalam erlenmeyer 100 mL dengan menggunakan pH yang optimum dan pada temperatur ruang. Kemudian di shaker selama 6 jam pada kecepatan 170 rpm. Larutan di sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 3000 rpm dan dianalisis menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 464 nm. Dari percobaan ini dapat diketahui kecocokan model adsorpsi isothermal dengan melihat nilai koefisien korelasi yaitu mengikuti model Langmuir atau model Freundlich.

Kinetika adsorpsi dilakukan dengan cara menimbang 1 g zeolit dicampur dengan 200 mL larutan methyl orange dengan konsentrasi 100 ppm. Campuran kemudian dimasukkan ke dalam erlenmeyer 250 mL dengan menggunakan pH yang optimum dan pada temperatur ruang. Kemudian di shaker pada kecepatan 170 rpm. Diambil 5 mL larutan setiap 1 menit pada 5 menit pertama, setiap 5 menit untuk 25 menit pertama dan tiap 10 menit untuk 135 menit. Larutan di sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 3000 rpm dan dianalisis menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 464 nm. Dari percobaan ini dapat diketahui kecocokan orde reaksi sistem adsorpsi dengan melihat nilai koefisien korelasi pada tiap orde reaksi.

Parameter termodinamika ditentukan dengan cara memvariasikan temperatur percobaan yaitu (280°C, 350°C, 450°C, dan 550°C). Percobaan ini dilakukan dengan cara sejumlah 50 mL larutan methyl orange dengan konsentrasi 100 ppm dicampurkan dengan 0,25 g zeolit hasil sintesis, dimasukkan ke dalam erlenmeyer 100 mL. Kemudian di shaker selama 6 jam pada kecepatan 170 rpm. Larutan di sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 3000 rpm dan dianalisis menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 464 nm.

## Hasil dan Pembahasan

### Karakterisasi Zeolite dari Abu Dasar

Pada analisis difraksi sinar-X dilakukan untuk memastikan terbentuknya silika dan alumina sebagai unsur-unsur utama dalam abu dasar berada dalam fasa kristalin yaitu alam bentuk kuarsa (SiO<sub>2</sub>) dan mulit (2SiO<sub>2</sub>.3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Selain fasa kristalin dan mulit, abu dasar juga tersusun oleh oksida-oksida silika dan alumina yang bersifat amorf.

Hasil sintesis zeolit dari abu dasar batubara menunjukkan bahwa sintesis tersebut menghasilkan zeolit faujasit – X, dan zeolit faujasit. Identifikasi pola difraksi sinar-X dilakukan dengan membandingkan puncak-puncak difraksi zeolit hasil sintesis dengan data base klasifikasi mineral JCPDS (Joint Committee on Powder Diffraction Standards) (2002). Dapat dilihat pada Gambar 1 Difraktogram produk sintesis zeolit abu dasar batubara.

Proses karakterisasi dilakukan pada rentang sudut 2θ sebesar 10-90 dan dari Gambar 1 dapat dilihat difraktogram zeolit

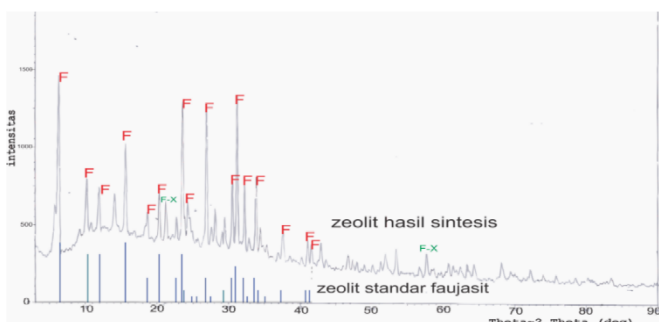
sintesis dari abu dasar batubara. Berdasarkan informasi basic data process XRD difraktogram (lampiran), diperoleh 15 puncak utama yang memiliki

intensitas relatif lebih besar. Keberadaan mineral silika dan alumina dalam zeolit dari abu dasar batubara diketahui dengan terbentuknya 15 puncak sudut  $2\theta$  untuk mineral zeolit faujasit-X dan zeolit faujasit. Peningkatan derajat kristalinitas pada sintesis zeolit abu dasar batubara yang cukup besar, mengindikasikan struktur mineral silika tersebut lebih teratur. Difraktogram faujasit tersebut sesuai dengan puncak karakteristik utama zeolit tipe faujasit standar JCPDS.

Zeolit-Y menampilkan struktur (faujasit), zeolit-Y ini dapat diganti oleh zeolit X dalam penggunaan proses ini karena lebih aktif dan stabil pada suhu tinggi. Hal ini disebabkan karena perbandingan Si/Al lebih tinggi. Rumus kimia tipe zeolit faujasit adalah  $\text{Na}_58(\text{Al}_{58}\text{Si}_{134}\text{O}_{384})\cdot 24\text{H}_2\text{O}$  (Anshori, 2009). Menurut Trisunaryati, (2009) ukuran pori-pori yang saling tegak lurus pada bidang x, y dan z mirip dengan LTA, diameter porinya 7,3 Å untuk zeolit X, Y dan struktur FAU (faujasit) diameter porinya 11,8 Å.

Ukuran pori merupakan faktor yang penting dalam proses adsorpsi. Molekul dengan ukuran besar akan lebih sulit masuk ke dalam pori atau ruang yang terdapat dalam zeolit. Molekul dengan ukuran kecil lebih mudah melakukan penetrasi ke dalam pori. Zeolit sintesis memerlukan kation sebagai pusat penyeimbang muatan untuk menjaga kenetralan muatan zeolit (Sunardi, 2007).

Zeolit bersifat asam yang disebabkan adanya situs asam Bronsted Lowry dan asam Lewis yang terdapat dalam struktur kristalnya. Pada zeolit, ion aluminium (III) akan digantikan oleh ion silikon $4+$ , sehingga muatan negatifnya akan dinetralkan oleh ion positif yang berdekatan. Hal ini terjadi karena adanya disosiasi air yang membentuk gugus hidroksil pada atom aluminium (Widjajanti, 2011).



**Gambar 1.** Difraktogram Zeolite dari Abu Dasar Batubara

Sunardi, 2007 telah melakukan penelitian tentang konversi abu layang batubara menjadi zeolit dan pemanfaatannya sebagai adsorben logam merkuri (II). Hasil karakterisasi menggunakan spektrofotometer inframerah dan difraktometer sinar X menunjukkan bahwa telah terbentuk zeolit tipe faujasit dari abu layang batu bara dengan puncak  $6,2^\circ$ ;  $10,1^\circ$ ;  $15,59^\circ$ ;  $26,81^\circ$ ;  $31,24^\circ$ ;  $32,31^\circ$  dan  $33,88^\circ$ .

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

sintesis zeolit abu dasar. Hasil karakterisasi zeolit abu dasar batubara menggunakan spektrofotometer inframerah (FT-IR) Gambar.2.



**Gambar 2.** Spektra Infra Merah Zeolite dari Abu Dasar

Gambar 2 memperlihatkan pita serapan yang muncul pada pita serapan pada bilangan gelombang 3700 – 3400  $\text{cm}^{-1}$  berhubungan dengan gugus hidroksil (-OH) dari molekul  $\text{H}_2\text{O}$  yang merupakan vibrasi rentang (ulur) dari gugus silanol (Si-OH). Gugus ini dimungkinkan berasal dari air hidrat pada kristal (Hamdan dalam Sunardi, 2007). Hasil zeolit sintesis serapan muncul pada daerah bilangan gelombang 3473,44  $\text{cm}^{-1}$ .

Pita serapan baru muncul pada bilangan gelombang 1643,67  $\text{cm}^{-1}$  menunjukkan adanya vibrasi bengkokan (tekuk) O-H dari gugus silanol (Si-OH). Pita serapan ini muncul karena terjadi penyerapan air dari udara disebabkan oleh sifat zeolit yang cukup higroskopis. Bilangan gelombang yang muncul lebih sempit dengan puncak 981,41  $\text{cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi asimetris internal Si-O atau Al-O dalam Si-O $_4$  atau TO $_4$  tetrahedral. Penyempitan pita serapan diperkirakan berhubungan dengan bertambah homogenya jenis spesies Si dan Al setelah proses sintesis (Sunardi, 2007).

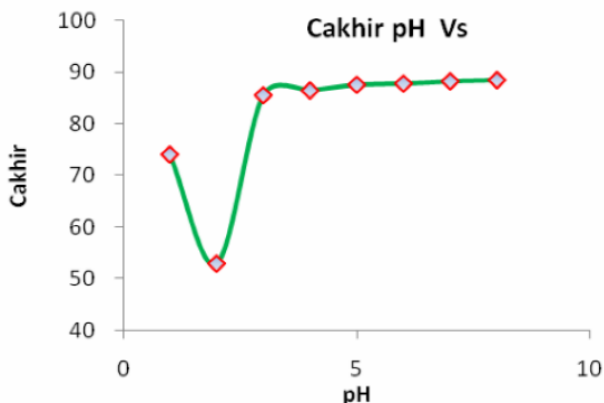
Pita serapan pada daerah 850 – 650  $\text{cm}^{-1}$  merupakan hasil vibrasi rentangan simetris, yaitu vibrasi internal pada 720 – 650  $\text{cm}^{-1}$  (Flanigen dkk, dalam Sunardi, 2007) dan vibrasi eksternal pada 780 – 720  $\text{cm}^{-1}$  (Sunardi, 2007). Pita serapan kecil dan tajam pada sintesis zeolit terdapat dalam bilangan gelombang 747,27  $\text{cm}^{-1}$  dan 667,49,3  $\text{cm}^{-1}$  merupakan vibrasi eksternal dan internal rentangan simetris T-O, dimana pita tajam tersebut menunjukkan adanya kristalinitas yang semakin tinggi. Dan serapan bilangan gelombang 457,31  $\text{cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi bengkokan (tekuk) ikatan Si-O/Al-O, dimana serapan lebih tajam dan kuat. Hal tersebut menunjukkan semakin banyak kristalinitas hasil yang terbentuk (Sunardi, 2007).

Hasil penelitian ini sama dengan hasil penelitian Sunardi, (2007). Dengan membandingkan spektrofotometer inframerah, dapat disimpulkan telah terbentuk zeolit tipe faujasit. Pita serapan vibrasi bengkokan (tekuk) T-O (Si-O/Al-O) pada daerah 475-450  $\text{cm}^{-1}$  sesuai dengan vibrasi tekuk T-O milik zeolit tipe faujasit.

#### Adsorpsi Methyl Orange dengan Zeolite dari Abu Dasar

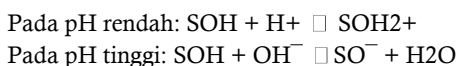
Variasi pH dilakukan untuk mengetahui kondisi pH optimum adsorpsi zeolit terhadap penyerapan zat warna methyl orange. Kajian interaksi methyl orange dengan situs aktif pada sintesis zeolit dilakukan dengan mengevaluasi data pengamatan pengaruh pH larutan terhadap jumlah methyl orange yang

teradsorpsi. Hasil yang didapatkan pada variasi pH ini dapat dilihat dalam gambar 3 hubungan pH dengan Konsentrasi akhir.



Gambar 3. Hubungan Cakhir Vs pH.

Kondisi pH sistem mengakibatkan perubahan distribusi muatan pada adsorben zeolit dan zat warna sebagai akibat terjadinya reaksi protonasi dan deprotonasi gugus-gugus fungsional. Pada Gambar 4.3 tersebut diketahui bahwa kapasitas adsorpsi pada pH asam lebih besar dari pada pH basa. Widjajanti, (2011) melaporkan bahwa situs tepi zeolit merupakan situs yang muatannya bervariasi tergantung pada harga pH, bermuatan positif pada pH asam (rendah) dan bermuatan negatif pada pH basa (tinggi) sebagai akibat protonasi dan deprotonasi gugus hidroksil permukaan (SOH). Widjajanti (2011) menuliskan reaksi protonasi dan deprotonasi SOH dapat dinyatakan oleh persamaan berikut:



Keasaman permukaan zeolit (asam Bronsted Lowry atau asam Lewis) sangat berperan dalam pembentukan ikatan antar muka. Dalam penelitian ini pH optimum adalah 2, artinya permukaan zeolit mengalami reaksi protonasi atau permukaan zeolit memiliki situs aktif  $SOH_2^+$ . Terjadi penurunan kapasitas adsorpsi pada pH yang berkisar antara 3-8, dikarenakan pH basa dapat mengganggu peningkatan protonasi pada larutan methyl orange. Hal ini disebabkan pada lapisan adsorben mengalami perubahan dari positif ke negatif, oleh karena itu dapat menurunkan kapasitas adsorpsi (Pratiwi dkk., 2010). Pratiwi dkk., (2010) menyatakan bahwa tingginya proses adsorpsi pada pH asam dikarenakan meningkatnya protonasi oleh penetralan muatan negatif dari permukaan adsorben.

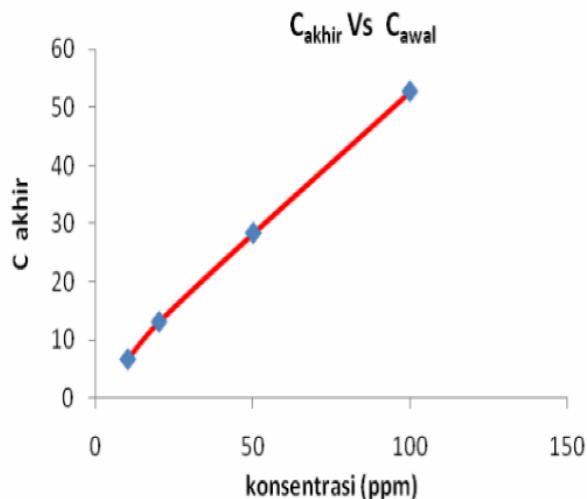
Pengaruh methyl orange dengan zeolit pada variasi pH ini dikarenakan pada permukaan zeolit terdapat adanya situs aktif  $SOH_2^+$  dan pada methyl orange terdapat gugus aktif sulfonat ( $SO_3^-$ ), sehingga adanya perbedaan situs aktif dari keduanya akan mengakibatkan terjadinya tarikan antar keduanya, sehingga terjadi ikatan antara methyl orange dengan permukaan zeolit yang sangat besar.

Hasil penelitian ini juga diperkuat oleh penelitian dari Pratiwi dkk., (2010) dan Widjajanti (2011) bahwa pH optimum untuk methyl orange dan methyl biru terdapat pada pH 2 pada adsorpsi

zeolit. Sehingga pengaruh pH terhadap proses adsorpsi methyl orange dipelajari pada rentang pH 1 hingga 8.

**Parameter Kesetimbangan Adsorpsi Isotermal**

Variasi konsentrasi dilakukan pada waktu 360 menit dan pH optimum. Dengan variasi konsentrasi 10, 20, 50 dan 100 ppm, didapat grafik seperti pada Gambar 4.



Gambar 4. Hubungan Cakhir Vs konsentrasi (ppm)

Hasil adsorpsi zeolit terhadap methyl orange dengan berbagai konsentrasi menunjukkan bahwa semakin besar konsentrasi methyl orange semakin besar pula zat yang teradsorp. Peningkatan konsentrasi disebabkan oleh melimpahnya kapasitas adsorpsi dalam larutan karena methyl orange menempel pada permukaan zeolit, maka semakin banyak partikel zeolit yang bertumbukan dan berinteraksi dengan methyl orange. Hal ini dibuktikan bahwa lapisan luar permukaan zeolit belum mengalami kejenuhan karena masih terdapat banyak situs aktif dalam zeolit hasil sintesis yang dapat digunakan untuk mengadsorpsi methyl orange, sehingga kapasitas adsorpsi terus meningkat pada konsentrasi 10 sampai 100.

Pratiwi dkk., (2010) juga meneliti pengaruh konsentrasi awal terhadap penyerapan metilen biru menggunakan abu dasar. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa penyerapan zat warna meningkat dengan meningkatnya konsentrasi awal zat warna. Hal ini disebabkan bahwa semakin meningkatnya konsentrasi methyl orange maka akan memberikan daya dorong terhadap methyl orange untuk teradsorpsi.

Data penelitian ini untuk tiap perlakuan dihitung menggunakan 2 model persamaan isoterm adsorpsi yaitu model Langmuir (persamaan 1) dan Freundlich (persamaan 2). Isoterm adsorpsi digunakan untuk mengetahui interaksi antara larutan dengan adsorben dan kemampuan optimum yang dapat dicapai oleh adsorben. Isoterm adsorpsi merupakan parameter yang sangat penting dalam adsorpsi karena ikut berperan dalam menentukan kondisi maksimum untuk menghasilkan adsorpsi yang optimal. Nilai parameter adsorpsi isotermal dari dua model dapat dilihat dalam Tabel 1.

**Tabel 1.** Isoterm Langmuir dan Freundlich pada adsorpsi methyl orange oleh zeolit abu dasar batubara.

Isoterm	R <sup>2</sup>	Konstanta
Langmuir	0,8982	b = -0,0337 mol/gram K = -2,760x10 <sup>-8</sup> mol/L
Freundlich	0,9961	1/n = 1,277 n = 2,392x10 <sup>-3</sup> mol/L K = 1,803X10 <sup>-4</sup> mol/gram

Berdasarkan hasil yang diperoleh dari pola isoterm pada Tabel 3 diatas dapat disimpulkan bahwa adsorpsi methyl orange menggunakan adsorben zeolit sintesis cenderung mengikuti persamaan Freundlich karena dihasilkan regresi linear (R<sup>2</sup>) yang lebih besar dibandingkan persamaan Langmuir. Kapasitas adsorpsi merupakan karakteristik yang paling penting pada adsorben yang menunjukkan ukuran kemampuan adsorben untuk mengadsorpsi adsorbet perunit massa adsorben. Kapasitas adsorpsi dimaksudkan untuk mengetahui seberapa besar kemampuan zeolit dalam mengadsorpsi methyl orange. Juga dimaksudkan untuk mengetahui besarnya energi yang diperlukan untuk adsorpsi tiap satu mol methyl orange oleh zeolit sintesis (Rustina, 2010).

Nilai kapasitas adsorpsi (K) zeolit terhadap methyl orange pada isoterm Freundlich relative lebih besar kemampuan mengadsorpsi methyl orange dibandingkan nilai kapasitas adsorpsi (b) pada isoterm Langmuir yang relative kecil kemampuan mengadsorpsinya. Dapat disimpulkan bahwa kapasitas adsorpsi pada isoterm Freundlich terdapat (1,803x10<sup>-4</sup>) mol adsorbat (methyl orange) yang dapat terserap dalam (g) adsorben (zeolit). Harga tetapan afinitas adsorpsi (n) pada isoterm Freundlich cenderung besar dibandingkan afinitas adsorpsi (K) pada isoterm Langmuir. Sehingga kecenderungan afinitas adsorpsi perliter larutan adsorbat (methyl orange) untuk membentuk suatu ikatan sebanyak mol zat terlarut dalam adsorben (zeolit). Apabila nilai afinitas tinggi, zeolit bekerja secara efektif didalam proses adsorpsi methyl orange (Bahri dkk., 2011). Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi methyl orange oleh zeolit hasil sintesis cenderung mengikuti pola isoterm Freundlich, sehingga menurut Adamson adsorpsi ini mengikuti adsorpsi fisika ( Rustina, 2010).

Adsorpsi Isoterm Freundlich merupakan adsorpsi yang terjadi di beberapa lapisan ganda (multilayer) dan ikatannya tidak kuat. Hal ini disebabkan Methyl orange mempunyai dua gugus amina. Masing - masing atom nitrogen memiliki pasangan elektron bebas (merupakan nukleofil) yang mudah mengikat ion H<sup>+</sup> pada permukaan zeolit. Adsorpsi methyl orange memiliki ion Na<sup>+</sup>, sehingga dimungkinkan selain terjadi adsorpsi juga terjadi pertukaran ion antara H<sup>+</sup> dan Na<sup>+</sup> (Widjajanti, 2011). Model isoterm Freundlich ini juga menjelaskan bahwa proses adsorpsi pada bagian permukaan bersifat heterogen dimana tidak semua permukaan adsorben mempunyai daya adsorpsi (Bahri, 2011).

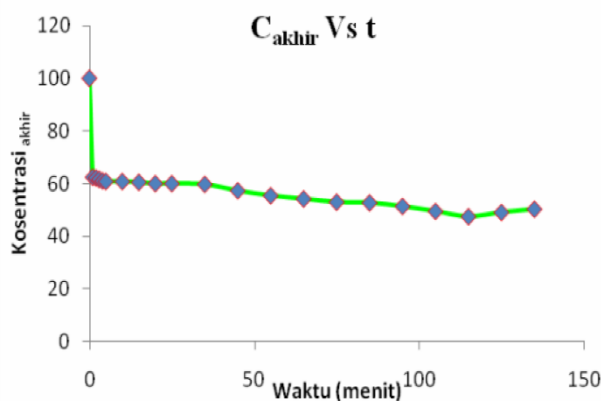
Pola isoterm Freundlich mengamsusikan bahwa adsorpsi terjadi interaksi secara fisika. Interaksi itu terjadi jika gaya intermolekular lebih besar dari gaya tarik antar molekul atau

gaya tarik-menarik yang relatif lemah antara methyl orange (adsorbat) dengan permukaan zeolit sintesis (adsorben) dan tidak melibatkan pembentukan ikatan kimia (Nurdiani, 2005). Adsorpsi fisika ini melibatkan gaya antar molekul yang relatif lemah, yaitu gaya Van der Waals dan dapat bereaksi balik (reversible). Gaya Van der Waals merupakan gaya dimana adsorbat (methyl orange) dapat bergerak dari satu bagian permukaan ke bagian permukaan lain dari adsorben (zeolit) (Nur'aini, 2012).

Dari gambar 5 menunjukkan adanya daya adsorpsi zeolit terhadap zat warna methyl orange yang cukup cepat dari menit pertama sampai terakhir menunjukkan laju yang konstan pada 115 menit . Hal ini terjadi, karena berkaitan dengan faktanya bahwa pada awalnya banyak sisi adsorben yang kosong sehingga kecenderungan larutan untuk terserap ke adsorben semakin tinggi dengan bertambahnya waktu yang lama hingga tercapai waktu yang optimum , walaupun terjadi kesetimbangan pada menit ke 10.

Penurunan adsorpsi terjadi setelah menit ke-115, dimana jumlah methyl orange yang teradsorpsi semakin menurun sehingga persentase methyl orange juga menurun. Hal ini disebabkan semakin lama waktu kontak, situs aktif pada adsorben sudah mengalami kejenuhan sehingga penambahan waktu yang lebih lama tidak akan mengalami perubahan pada jumlah methyl orange yang teradsorpsi (Yu dkk dalam Zakaria, 2011). Menurut Fahrizal (2008) setelah waktu optimum adsorpsi tercapai, kapasitas adsorpsi (Q) cenderung menurun yang disebabkan oleh jumlah adsorben yang berikatan dengan adsorbat sudah dalam keadaan jenuhnya. Apabila ditambahkan waktu adsorpsi yang berlebih akan menyebabkan terjadinya proses desorpsi atau pelepasan kembali antara adsorben dan adsorbat.

Dapat disimpulkan bahwa zeolit ini mampu mengadsorpsi zat warna methyl orange, hal ini diakibatkan oleh kondisi fisik adsorben zeolit yang berbentuk bubuk dan lebih kecil untuk ukuran partikelnya sehingga luas permukaan adsorben zeolit lebih luas dan lebih cepat pula dalam menyerap methyl orange. Data yang dihasilkan pada variasi waktu dapat dilihat dalam Gambar 5.



**Gambar 5.** Hubungan C<sub>akhir</sub> (mg/L) Vs waktu

Kinetika adsorpsi menjelaskan kecepatan pengambilan zat terlarut (adsorbat) oleh adsorben selama waktu reaksi penyerapan. Widihati (2012), mengatakan kinetika adsorpsi

merupakan salah satu faktor penting dalam proses adsorpsi karena menunjukkan tingkat kecepatan penyerapan adsorben terhadap adsorbatnya. Kemampuan penyerapan dapat dilihat laju adsorpsinya dalam hal ini pengujian terhadap laju adsorpsi dilakukan melalui penentuan orde reaksi secara eksperimen yaitu pseudo orde satu dan pseudo orde dua.

Uji parameter kinetika waktu untuk pseudo orde satu dilakukan dengan memplotkan  $\ln(q_e - q_t)$  terhadap  $t$  dengan membuat kurva linear yang ditunjukkan dalam lampiran. Sedangkan Pseudo orde dua, berdasarkan uji parameter kinetika waktu untuk orde dua dilakukan dengan memplotkan  $t/q_t$  terhadap  $t$ .

Berdasarkan analisis pseudo orde satu, diperoleh kelinearan dengan koefisien korelasi ( $R^2$ ) yang lebih kecil dibandingkan pseudo orde dua. Sehingga pseudo orde dua sesuai untuk ditetapkan sebagai model kinetika adsorpsi methyl orange pada zeolit abu dasar batubara. Hal ini memiliki tingkat keakuratan yang tinggi bahwa nilai koefisien regresi linear ( $R^2$ ) yang diperoleh mendekati satu atau  $> 0,99$ . Asumsi pseudo orde satu menggambarkan hubungan antara zat teradsorp dalam sejumlah berat adsorben tertentu dalam kondisi kesetimbangan pada temperatur konstan.

**Tabel 2.** Parameter kinetika reaksi pada adsorpsi methyl orange oleh zeolit abu dasar batubara.

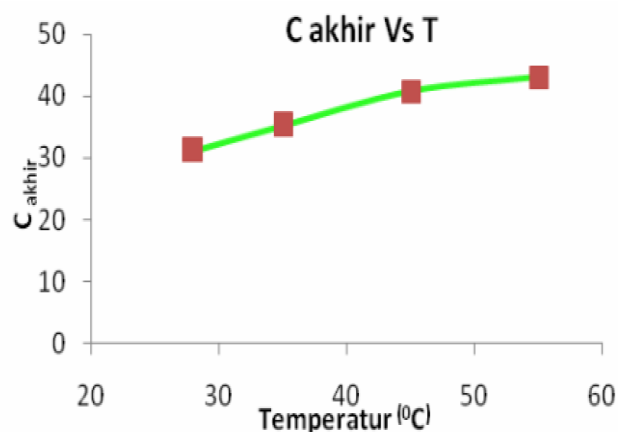
Pseudo orde satu			Pseudo orde dua		
$k_1$ (menit. <sup>-1</sup> )	$Q_e$ (mg/g)	$R^2$	$k_2$ (g/mg min)	$Q_e$ (mg/g)	$R^2$
0,0048	1,698	0,207	0,0208	10,277	0,994

Berdasarkan nilai  $R^2$ , nilai konstanta laju adsorpsi ( $k$ ) dan kapasitas adsorpsi ( $q_e$ ) yang didapat dari pseudo orde dua lebih besar dibandingkan pseudo orde satu. Disimpulkan bahwa kinetika adsorpsi methyl orange oleh zeolit dari abu dasar batubara cenderung mengikuti pseudo orde dua. Kurnia (2010) melaporkan bahwa proses adsorpsi dipengaruhi oleh konsentrasi adsorbat dan ketersediaan situs aktif pada permukaan adsorben. Menurut Anis (2012) persamaan orde dua mengasumsikan bahwa adsorpsi kimia (chemisorption) merupakan laju pengontrol pada proses adsorpsi.

Konstanta laju adsorpsi ( $k$ ) dimaksudkan untuk mengetahui seberapa cepat atau lambat reaksi itu berlangsung pada keadaan setimbang dan pada temperatur konstan. Nurlamba dkk., (2010) mengatakan bahwa semakin besar harga tetapan laju, maka lebih cepat pula adsorpsinya. Berdasarkan harga tetapan laju tersebut maka reaksi untuk adsorpsi zeolit terhadap methyl orange berlangsung lebih cepat karena semakin banyaknya sisi aktif adsorben yang tersedia maka akan semakin mudah pula terjadi adsorpsi sehingga laju reaksinya akan semakin cepat. Konstanta laju adsorpsi pada pseudo orde dua ( $k_2$ ) dapat dijelaskan bahwa kecepatan gram adsorben (zeolit) dalam mengadsorp mg adsorbat (methyl orange) pada sekian menit.

Kapasitas adsorpsi ( $q_e$ ) dimaksudkan untuk mengetahui seberapa besar kemampuan zeolit dalam mengadsorp methyl orange. Sehingga banyak sisi aktif zeolit yang dapat diisi oleh adsorbat (methyl orange) (Rustina, 2010). Kapasitas adsorpsi ( $q_e$ ) pada pseudo orde dua dapat disimpulkan bahwa terdapat (mg) adsorbat (methyl orange) yang dapat terserap dalam (g) adsorben (zeolit).

Penentuan kapasitas adsorpsi zat warna methyl orange untuk adsorben abu dasar batu bara dilakukan pada variasi suhu dengan menggunakan kondisi pH optimum. Pada percobaan ini dilakukan variasi konsentrasi yaitu 10, 20, 50, dan 100 ppm. Persentase adsorpsi yang diperoleh didapatkan grafik yang dapat dilihat pada Gambar 6.



**Gambar 6.** Hubungan Cakhir (mg/L) Vs temperatur

Dapat disimpulkan bahwa semakin besar temperatur maka semakin meningkat konsentrasi akhir dari hasil adsorpsi zeolit terhadap methyl orange. Temperatur optimum terjadi pada temperatur ke-280C dan semakin tinggi temperatur reaksi, semakin rendah penyerapan methyl orange. Hal ini dikarenakan dengan semakin tinggi temperatur maka akan menyebabkan pecahnya struktur zeolit. Karena semakin tinggi temperatur pada proses adsorpsi, maka pergerakan methyl orange semakin cepat sehingga jumlah methyl orange yang terserap oleh zeolit semakin berkurang (Kundari dkk., 2008).

Penelitian ini diperkuat oleh (Zakaria, 2011) yang melakukan penelitian tentang adsorpsi Cu (II) menggunakan zeolit sintesis dari abu terbang batubara. Hasil penelitiannya menyatakan bahwa temperatur optimum terjadi pada temperature ke-270C. Al-Anber dkk., (2008) mengatakan bahwa penurunan adsorpsi pada peningkatan temperatur disebabkan karena kelemahan dari kekuatan sisi aktif adsorpsi tersebut dimana fasa adsorben itu molekulnya saling berdekatan. Hasil yang telah diteliti bahwa temperatur optimum terjadi pada 280C.

Tujuan mempelajari parameter termodinamika ini agar dapat memprediksi apakah suatu reaksi akan terjadi atau tidak ketika sejumlah pereaksi dicampur pada kondisi temperatur tertentu. Reaksi yang sesungguhnya terjadi pada kondisikondisi tersebut dinamakan reaksi spontan. Jika reaksinya tidak terjadi, maka reaksinya disebut reaksi nonspontan (Chang, 2004).

Interaksi zeolit dengan methyl orange pada variasi temperatur dapat ditentukan dari termodinamika dengan

membuat kurva linear antara  $\ln k$  lawan  $1/T$  yang ditunjukkan pada Gambar 6.

**Tabel 3.** Parameter termodinamika adsorpsi methyl orange oleh zeolit abu dasar batubara.

Temperatur ( $^{\circ}\text{C}$ )	k	$\Delta G_0$ (Kj/mol)	$\Delta H_0$ (Kj/mol)	$\Delta S_0$ (J/mol)
28	2,207			
35	1,839	-8.825,652	-0,2485	29,058
45	1,455			
55	1,324			

Dari Gambar 6 dapat disimpulkan bahwa interaksi zeolit terhadap methyl orange dapat disimpulkan bahwa konstanta kesetimbangan ( $k$ ) semakin turun dengan meningkatnya temperatur. Sedangkan hasil analisis data dijelaskan bahwa nilai energi bebas Gibbs ( $\Delta G_0$ ) sistem adsorpsi methyl orange dengan zeolit abu dasar batubara bernilai negatif pada semua kondisi temperatur. Sehingga pembentukan sistem adsorpsi adsorben dengan adsorbat bersifat spontan. Reaksi spontan pada umumnya reaksi eksotermis yang terjadi pada temperatur kamar. Penelitian ini membuktikan bahwa proses adsorpsi bersifat eksotermis (melepaskan energi dari sistem ke lingkungan) yang diperkuat dengan data energi entalpi ( $\Delta H$ ) bernilai negatif yaitu (-0,2485 Kj/mol) dan energi entropi ( $\Delta S$ ) bernilai positif yaitu (29,058 Kj/mol). Dari data energi bebas yang dihitung pada temperatur 28, 35, 45 dan 55 $^{\circ}\text{C}$  diperoleh nilai ( $-\Delta G_0$ ) sebesar -8.825,652 Kj/mol.

Suasana eksotermis sistem adsorpsi pada zeolit menunjukkan peningkatan entropi ( $+\Delta S$ ) sebesar 29,058 (Kj/mol) dan energi bebas Gibbs bernilai negatif sebesar -8.825, 652 (Kj/mol), artinya terjadi kenaikan derajat kebebasan spesies teradsorpsi methyl orange pada zeolit sebagai akibat kenaikan temperatur maka akan menurunkan energi Gibbs, sehingga proses adsorpsi berjalan spontan (Bahri, 2011). Zakaria, (2011) mengatakan bahwa adanya peningkatan derajat kebebasan pada sistem adsorben-adsorbat, jadi ion-ion pada methyl orange yang terserap pada adsorben semakin tidak teratur.

## Kesimpulan

Sintesis zeolit abu dasar batubara dengan metode peleburan alkali hidrotermal menghasilkan kerangka zeolit. Hal ini dibuktikan dengan karakterisasi X-Ray Diffraction (XRD) menunjukkan bahwa hasil sintesis zeolit mempunyai puncak-puncak yang tajam diantaranya terdapat struktur material zeolit faujasit - X dan zeolit faujasit yang ditunjukkan dengan puncak utama yaitu 6,2940; 26,8950; dan 31,1900. Hasil dengan karakterisasi FTIR yang menunjukkan bahwa zeolit sintesis memiliki pita serapan vibrasi bengkakan (tekuk) T-O (Si-O/Al-O) pada daerah bilangan gelombang 457,31  $\text{cm}^{-1}$  sesuai dengan vibrasi tekuk T-O milik zeolit tipe faujasit. Adsorpsi methyl orange oleh zeolit dari abu dasar batubara terjadi pada pH 2, kesetimbangan adsorpsi cenderung mengikuti pola isoterm Freundlich dengan kapasitas adsorpsi ( $n$ ) yaitu  $2,392 \times 10^{-3}$

mol/L dan nilai konstanta ( $K$ ) yaitu  $1,803 \times 10^{-4}$  mol/g. Kinetika adsorpsi cenderung mengikuti pseudo orde dua dengan nilai konstanta laju reaksi ( $k$ ) yaitu 0,0208 (g/mg min) dan kapasitas adsorpsi ( $q_e$ ) yaitu 10,277 (mg/g). Termodinamika adsorpsi membuktikan bahwa pembentukan sistem adsorpsi adsorben dengan adsorbat bersifat spontan ditunjukkan dengan nilai  $\Delta G_0 = (-8.825,652 \text{ Kj/mol})$ ,  $\Delta H_0 = (-0,2485 \text{ Kj/mol})$ , dan  $\Delta S_0 = (+29,058 \text{ Kj/mol})$ .

## Daftar Pustaka

- Al-Anber, Z.A., dkk., 2008, Thermodynamics and Kinetic Studies of Iron (III) Adsorption by Olive Cake in a Batch System, Article Jordan, Faculty of Science Mu'tah University.
- Anshori, J., 2009, Siklisasi Intramolekuler Sitronelal Dikatalisis Zeolit dan Bahan Mesoporus, Karya Tulis Ilmiah Kimia, Bandung : FMIPA Universitas Padjadjaran
- Bahri, S., Muhdarina, Nurhayati, dan Fitri A., 2011, Ioterma dan Termodinamika Adsorpsi Kation  $\text{Cu}^{2+}$  Fasa Berair pada Lempung Cengar Terpillar, Jurnal Jurusan Teknik, Pekanbaru : FMIPA Universitas Riau.
- Cahyadi, W., 2006, Analisis dan Aspek esehatan Bahan Tambahan Pangan, Jakarta: Bumi Aksara.
- Chang, R., 2004, Kimia Dasar Edisi Ketiga : Konsep-Konsep Inti, PT. Gelora Aksara : Erlangga.
- Fahrizal, 2008, Pemanfaatan Tongkol Jagung Sebagai Biosorben Zat Warna Biru Metilena, Skripsi kimia, Bogor : Fakultas MIPA IPB.
- Hamdan, H., 1992, Introduction to Zeolites Synthesis, Characterization and Modification, First Edition, Kuala Lumpur: University Teknologi Malaysia.
- Hessley, R.K., Reasoner, J.W., and Riley, J.T., 1986, Coal Science, An Introduction to Chemistry, Technology and Utilization, Mc Graw Hill Publishing Company Limited, London.
- Karmila, Y., 2006, Sintesis dan Karakterisasi  $\text{TiO}_2$  - Zeolit Serta Aplikasi Bahan Tersebut Untuk Mendegradasi Zat Warna Methyl Orange dalam Media Air, Skripsi, Yogyakarta : FMIPA UGM.
- Kartika, S., Atik P., dan Heri W., 2009, Modifikasi Limbah Fly Ash sebagai Adsorben Zat Warna Tekstil Congo Red yang Ramah Lingkungan dalam Upaya Mengatasi Pencemaran Industri Batik, Jurnal Kimia, Surakarta : FMIPA Universitas Sebelas Maret.
- Kula O., (2000), "Effects of Colemanite Waste, Coal Bottom Ash and Fly Ash on The properties of cement", Journal of cement and concrete research, p.491-494.
- Kundari, Noor A., dan Slamet W., 2008, Tinjauan Kesetimbangan Adsorpsi Tembaga dalam Limbah Pencuci PCB dengan Zeolit. Seminar Nasional IV SDM Teknologi Nuklir, Yogyakarta: STTN BATAN.
- Kurnia, Y., 2010, Studi Adsorpsi Zat Warna Rhodamin B Menggunakan Abu Dasar Batubara PLTU Paiton, Skripsi, Yogyakarta : Fakultas MIPA UGM.

- Mahatmanti, F., 2003, Kajian Termodinamika Penyerapan Zat Warna Indikator Metil Oranye (Mo) Dalam Larutan Air Oleh Adsorben Kitosan, Jurnal Kimia, Semarang : FMIPA UNS.
- Molina, A., dan Poole, C., (2004). A Comparative Study Using Two Methods To Produce Zeolites from Fly Ash. Mineral Engineering. Vol. 17, hal. 167173.
- Murniati, dkk., 2009, Pemanfaatan Limbah Abu Dasar Batubara Sebagai Bahan Dasar Sintesis Zeolit Dan Aplikasinya Sebagai Adsorben Logam Berat Cu (II), Jurnal Kimia, Yogyakarta: FMIPA UGM.
- Nur'aini, A., 2012, Sintesis Silika Gel Dari Abu Dasar Batubara Dan Uji Adsorpsi Terhadap Rhodamin, Skripsi Jurusan Kimia, Yogyakarta : F.Sains dan Teknologi. UIN Sunan Kalijaga.
- Nurdiani, D., 2005, Adsorpsi Logam Cu (II) dan Cr (VI) pada Kitosan Bentuk Serpihan dan Butiran, Skripsi S-1 Jurusan Kimia, Bogor : Fakultas MIPA IPB.
- Nurlamba, N., dkk., Kajian Interaksi Kitosan-Bentonit dan Adsorpsi Diazinon Terhadap Kitosan-Bentonit, Jurnal Sains dan Teknologi Kimia, Jurusan Kimia, Jakarta : FMIPA UPI.
- Pratiwi, L., Ita Ulfan, dan Nurul W., 2010, Adsorpsi Metilen Biru dengan Abu Dasar PT. Ipmomi Probolinggo Jawa Timur dengan Metode Kolom, Prosiding Skripsi Semester Genap 2009/2010, Surabaya : Fak. MIPA Institut Teknologi Sepuluh
- Rustina, 2010, Mg/Al Hidrotalcite : Synthesis dan Aplikasinya sebagai Adsorben Methyl Orange dan Methyl Blue, Skripsi, Jurusan Kimia, Yogyakarta : FMIPA UGM.
- Sunardi dkk., 2007, Konversi Abu Layang Batubara Menjadi Zeolit dan Pemanfaatannya sebagai Adsorben Logam Merkuri (II), Jurnal Sains dan Terapan Kimia, Vol. 1, No.1, Jurusan Kimia, Banjarbaru : FMIPA UNLAM.
- Widhianti, W.D., 2010, Pembuatan Arang Aktif Dari Biji Kapuk (Ceiba pentandra L.) Sebagai Adsorben Zat Warna Rhodamin B, Skripsi S-1 Jurusan Kimia, Surabaya : Fakultas SAINTEK Universitas Airlangga.
- Widihati, I., dkk., 2012, Studi Kinetika Adsorpsi Larutan Ion Logam Kromium (Cr) Menggunakan Arang Batang Pisang (Musa Paradisiaca), Jurnal, Jurusan Kimia Bukit Jimbaran : FMIPA UNIVERSITAS UDAYAN
- Yanti, Y., dkk., 2009, Sintesis Zeolit A dari Abu Dasar Batubara PT IPMOMI Paiton, Seminar Nasional Kimia, Jurusan Kimia, Surabaya : FMIPA ITS.
- Zakaria, A., 2011, Adsorpsi Cu (II) Menggunakan Zeolit Sintesis dari Abu Terbang Batubara, Tesis S-2, Bogor : Program Pascasarjana IPB.