

MODIFIKASI ZEOLIT ALAM SEBAGAI ADSORBEN AMMONIUM HIDROKSIDA (NH₄OH)

Nur Indah Fajar Mukti

Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri, Universitas Islam Indonesia
Jl. Kaliurang km 14,5, Ngemplak, Sleman, Yogyakarta, 55584
E-mail : nurindah_fm@uui.ac.id

ABSTRACT

Natural zeolite is a mineral that are widely available in Indonesia. Among many other benefits, the natural zeolite can be used as an adsorbent to reduce water pollutant caused by ammonia compounds and combination of derivatives. This research aimed to study the effect of natural zeolite dealumination on the adsorption properties of ammonium hydroxide (NH₄OH). Dealumination effect was studied by varying the concentration of HNO₃ (0.5 N, 5 N and 10 N). The adsorption process of NH₄OH was observed by studying the adsorption time with amount of NH₄OH adsorbed on the surface of the zeolite. In addition, also studied the effect of heating (calcination) after dealumination to the NH₄OH uptake. In this study, NH₄OH adsorbed on zeolite surface was observed by Fourier Transform Infrared (FTIR). Results were showed that the amount of NH₄OH adsorbed on H- zeolite has a maximum (80.8%) at 5 N HNO₃. From the calcination process, it was noted that H-zeolite undergo calcination process has higher NH₄OH adsorption capacity than that of the H-zeolite without a calcination process. FTIR analysis was showed that NH₄OH adsorbed on the surface of H- zeolite on Brønsted acid peak.

Keywords : Adsorption, NH₄OH, Dealumination, FTIR.

1. PENDAHULUAN

Zeolit merupakan batuan mineral yang banyak tersedia di Indonesia. Zeolit memiliki banyak kegunaan, diantaranya sebagai katalis, adsorben, penukar ion, dan penghilangan kesadahan pada air. Keistimewaan zeolit adalah sifatnya yang dapat diatur sehingga dapat dimodifikasi sesuai dengan kebutuhan dengan cara pemanasan atau proses kimia. Oleh karena kelebihan yang dimilikinya tersebut, zeolit alam dapat dimodifikasi agar dapat digunakan sebagai adsorben untuk mengatasi pencemaran limbah cair dalam industri kimia maupun limbah - limbah pertanian berupa senyawa - senyawa ammonia dan kombinasi turunannya.

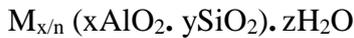
Pencemaran limbah cair oleh senyawa-senyawa amonia dan kombinasi turunannya jika ditinjau dari sifat-sifat khas jenis pencemar ini, baik secara fisika, kimiawi maupun biologis, sama sekali tidak dapat diabaikan. Termasuk diantaranya beberapa senyawa turunan amoniak-organik tertentu yang sangat beracun bagi biota akuitik pada

kadar ratusan kali lipat lebih kecil dari kadar amonia bebas dalam limbah cair. Menurut Keputusan Menteri Negara Lingkungan Hidup Tahun 1995 batas maksimum persyaratan amonia bebas dalam air minum yaitu kurang dari 0,05 ppm. Untuk itu diperlukan penanganan untuk mengurangi kandungan ammonia pada limbah cair tersebut melalui proses adsorpsi. Adsorben yang digunakan adalah zeolit alam, dimana zeolit yang berasal dari alam masih memiliki banyak pengotor dan memiliki kemampuan yang rendah untuk proses adsorpsi. Oleh karena itu, diperlukan proses aktivasi pada zeolit untuk meningkatkan keaktifannya dalam menjerap.

Zeolit mempunyai kemampuan menyerap atau menolak molekul secara selektif berdasarkan atas perbedaan ukuran, bentuk dan polaritasnya. Karakteristik kemampuan adsorpsi oleh zeolit dapat dimodifikasi sedemikian rupa antara lain dengan cara pertukaran kation, dekationisasi, penyerapan awal molekul yang sangat polar, *poreclosure effect*, dealuminasi, dan

peningkatan rasio Si/Al (Kirk and Othmer, 1990).

Struktur kristal zeolit tersusun atas atom Si dan Al dalam bentuk *tetrahedra* (TO_4) yang disebut unit bangun primer. Unit-unit primer ini berikatan satu dengan lainnya membentuk struktur berpori yang lebih besar. Zeolit dapat dituliskan dengan rumus :



dimana:

n adalah valensi logam,

z adalah air kristal tiap unit sel

x dan y adalah jumlah tetrahedra tiap unit sel

Dealuminasi merupakan peristiwa lepasnya Al dalam kerangka (*Al framework*) menjadi Al di luar kerangka. Peristiwa dealuminasi menyebabkan peningkatan rasio Si/Al. Pada proses dealuminasi, terkadang kalsinasi dilakukan untuk mengurai senyawa - senyawa pembantu yang dapat terbakar. Adsorpsi adalah proses akumulasi suatu zat pada bidang batas (*interface*) 2 fase yang dapat berupa kombinasi cair - cair, padat - cair, gas - cair dan padat - gas. Fase pengadsorpsi disebut adsorben dan zat yang diadsorpsi disebut adsorbat. Sifat adsorpsi zeolit terjadi karena terdapatnya rongga dalam struktur zeolit. Kapasitas penjerapan zeolit berhubungan dengan ruang dan volume yang ada.

Pada penelitian ini dipelajari dealuminasi zeolit alam dan pengaruhnya terhadap penjerapan NH_4OH . Dalam hal ini analisis dengan *fourier transform infrared* digunakan untuk mengidentifikasi gugus NH_4OH atau ammonia yang terjerap pada permukaan zeolit pada tingkatan dealuminasi yang berbeda. Variabel yang diteliti adalah konsentrasi HNO_3 yang digunakan dalam proses dealuminasi terkait dengan banyaknya NH_4OH yang terjerap oleh zeolit. Selain itu penelitian ini juga pengaruh kalsinasi pasca dealuminasi pada zeolit alam terhadap proses adsorpsi NH_4OH .

2. METODE PENELITIAN

Bahan - bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam, asam nitrat 65%, ammonia 25% serta aquadest. Zeolit alam didapatkan dari Trembono, Gunung Kidul. Sedangkan asam nitrat 65% dan ammonia 25% diperoleh dari Chemix Pratama Yogyakarta. Prosedur pelaksanaan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi :

a. Persiapan Bahan

Zeolit alam yang berupa bongkahan besar dihancurkan dan lalu dihaluskan dengan ball mill untuk kemudian diayak hingga diperoleh ukuran -100+200 mesh. Kemudian zeolit dicuci menggunakan aquadest pada suhu $100^\circ C$ selama 1 jam sebanyak 3 kali. Zeolit kemudian dikeringkan pada suhu $120^\circ C$ selama 8 jam.

b. Pengasaman dan Dealuminasi

Zeolit yang telah dicuci kemudian di asamkan menggunakan HNO_3 pada suhu $80^\circ C$ selama 1 jam sebanyak 3 kali. Proses pengasaman terhadap zeolit dengan HNO_3 dilakukan pada berbagai konsentrasi (0.5 N, 5 N dan 10 N). Kemudian dilakukan kembali pencucian dengan aquadest pada suhu $80^\circ C$ sampai pH larutan 3. Zeolit kemudian dikeringkan pada suhu $120^\circ C$ selama 8 jam. Pada proses ini selain terjadi pertukaran kation juga terjadi proses dealuminasi zeolit.

c. Kalsinasi

Zeolit yang telah diasamkan kemudian dikalsinasi untuk menstabilkan sifat zeolit yang akan digunakan. Kalsinasi dilakukan dengan pemanasan dalam *furnace* pada suhu $500^\circ C$ dengan laju kenaikan suhunya sebesar $1,5^\circ C$ /menit dan ditahan pada suhu tersebut selama 1 jam.

d. Adsorpsi ammonia

H-zeolit dimasukkan dalam larutan NH_4OH 0,1 N. Waktu adsorpsi dihitung sejak sampel dimasukkan dalam larutan (waktu $t=0$). Untuk periode waktu tertentu sampel diambil sebanyak 2 mL. Selama proses berlangsung, pengadukan dijalankan terus. Sampel diambil dengan selang waktu 1 menit pada 5 menit pertama, selang waktu 5 menit hingga 25 menit berikutnya, selang waktu 10 menit hingga 1 jam berikutnya dan

terakhir pada selang waktu 15 menit hingga 1 jam berikutnya. Analisis sampel dilakukan dengan metoda titrasi menggunakan HCl 0,01 N yang telah di standardisasi dengan menggunakan boraks. Proses adsorpsi ini dikenakan untuk sampel H-zeolit yang diasamkan dalam HNO₃ 0.5 N, 5 N, 10 N, dan zeolit yang hanya dicuci dengan menggunakan aquades. Selain itu, proses adsorpsi juga dilakukan pada H-zeolit yang telah mengalami proses kalsinasi (0,5 N, 5 N, dan 10 N). Pada bagian akhir proses adsorpsi, zeolit tersebut kemudian direndam semalaman (22 jam) dan kemudian dikeringkan dengan menggunakan oven pada suhu 150° C selama 8 jam.

e. Analisis dengan FTIR

Sampel zeolit dihaluskan dengan mortal sampai halus. Kemudian 0,001 gram sampel zeolit yang telah dihaluskan dicampur dengan KBr sampai mencapai berat 0,02 gram. Setelah homogen, campuran tersebut diambil sebanyak 0,004 gram dan kemudian dicampur dengan KBr sampai mencapai berat 0,02 gram. Setelah homogen campuran ditimbang sebanyak 0,01 gram. Campuran kemudian dicetak dengan menggunakan alat cetak sampel yang tersedia sedemikian sehingga diperoleh tingkat transparansi tertentu. Sampel yang sudah siap kemudian diletakkan pada tempat sampel di dalam ruang FTIR yang tersedia. Hasil pengukuran dalam persen transmittan direkam secara otomatis pada *personal computer*.

f. Analisis Data

Keadaan kesetimbangan adsorpsi pada penelitian ini dievaluasi dengan persamaan – persamaan empiris *adsorption isotherm* :

a. *Langmuir isotherm*

(Perry and Green, 1997)

$$x_e = \frac{K \cdot b \cdot C_e}{1 + K \cdot C_e} \dots\dots\dots(1)$$

dimana :

K & b : Konstanta Persamaan *Langmuir*.

b. *Freundlich isotherm*

(Perry and Green, 1997)

$$x_e = K \cdot C_e^{1/n} \dots\dots\dots(2)$$

dimana :

K & n : Konstanta Persamaan *Freundlich*.

Konsentrasi keseimbangan (X_e) ditentukan dari data percobaan dengan membuat neraca massa NH₄OH di dalam cairan dan padatan. Konsentrasi NH₄OH pada padatan pada keadaan setimbang :

$$x_e = \frac{(C_o - C_e)V}{W} \dots\dots\dots(3)$$

Mekanisme proses adsorpsi pada zeolit diawali oleh transfer massa dari badan cairan ke permukaan zeolit. Transfer massa dari badan cairan ke permukaan zeolit dituliskan dengan persamaan berikut :

$$N_A = k_L (C_L - C_S) \dots\dots\dots(4)$$

Pada penelitian kali ini butiran padatan dibuat sangat kecil sehingga tahanan difusi pada padatan menjadi kecil. Oleh karena itu proses difusi di dalam padatan dapat diabaikan. Hal ini mengakibatkan adsorpsi berlangsung sangat cepat sehingga nilai C_s dianggap selalu setimbang dengan nilai C_e.

Neraca massa NH₄OH di dalam cairan pada berbagai waktu dituliskan dengan persamaan berikut :

laju *input* – laju *output* = laju akumulasi

$$0 - k_L (C_L - C_S) 4\pi R^2 N_b = \frac{d}{dt} (C_L \cdot V) \dots\dots (5)$$

$$-k_L (C_L - C_S) 4\pi R^2 N_b = V \frac{dC_L}{dt} \dots\dots\dots(6)$$

$$\frac{dC_L}{dt} = \frac{-k_L (C_L - C_S) 4\pi R^2 N_b}{V} \dots\dots\dots(7)$$

nilai k_L diperoleh dari bilangan tak berdimensi Sherwood yang nilainya mendekati 2 :

$$Sh = \frac{k_L \cdot d_p}{D_{AB}} = 2 \dots\dots\dots(8)$$

Sedangkan nilai difusivitas NH_4OH di dalam cairan didekati dengan Persamaan Wilke Chang (Treybal, 1981).

$$D_{AB} = \frac{117,3 \times 10^{-18} \times (\varphi_B \cdot M_B)^{0,5} \cdot T}{\mu_A V_A^{0,6}} \dots\dots\dots(9)$$

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini dipelajari dealuminasi zeolit alam dan pengaruhnya terhadap penjerapan NH_4OH . Dalam hal ini *Fourier Transform Infrared* digunakan untuk mengidentifikasi gugus ammonia yang terjerap pada permukaan zeolit pada tingkatan dealuminasi yang berbeda.

Zeolit alam yang awal mulanya tidak aktif perlu diaktifkan terlebih dahulu. Pengaktifan zeolit dilakukan dengan dua tahap yaitu tahap pertama dengan cara mencuci zeolit yang bertujuan untuk membersihkan zeolit yang masih mengandung pengotor yang dapat larut dalam air dan untuk membuka pori-porinya. Setelah itu, zeolit dikeringkan agar air yang masih terdapat pada pori - pori zeolit dapat teruapkan.

Tahap yang kedua yaitu dengan mengasamkan zeolit dengan menggunakan HNO_3 . Pengasaman ini bertujuan untuk menukar kation yang ada dalam zeolit digantikan dengan proton H^+ dari asam nitrat, selain itu juga terjadi proses dealuminasi. Zeolit dapat dipertukarkan kationnya karena perbedaan muatan antara Si_4^+ dan Al_3^+ menjadikan Al dalam kristal bermuatan negatif dan membutuhkan kation penetral. Kation penetral yang bukan menjadi bagian dari kerangka ini mudah diganti dengan kation lainnya. Penggantian kation penetral dengan proton menjadikan zeolit menjadi padatan yang bersifat asam.

Dealuminasi terjadi karena Al dalam kerangka zeolit larut dan bereaksi dengan asam. Efek dealuminasi akan menyebabkan rasio Si/Al dalam zeolit meningkat. Asam yang ditambahkan pada proses pertukaran kation menyumbang proton sebagai asam *Brønsted* pada zeolit, sehingga semakin tinggi konsentrasi asam maka semakin kuat

keasaman zeolit. Namun konsentrasi asam yang semakin kuat akan menyebabkan rasio Si/Al semakin besar sehingga jumlah asam yang ada pada zeolit semakin sedikit (Wang *et al.*, 2007).

Tahap pencucian setelah proses dealuminasi dilakukan sampai pH larutan mencapai 3. Digunakan pH 3 agar reaksi antara NH_4OH dengan HNO_3 di larutan dapat diabaikan. Jika digunakan pH kurang dari 3 dikhawatirkan proses yang terjadi tidak hanya proses adsorpsi tetapi juga terjadi reaksi antara NH_4OH dengan HNO_3 yang masih tersisa setelah proses dealuminasi. Akan tetapi, proses adsorpsi akan lebih efektif dilakukan pada pH 4-8. Karena pada range pH tersebut efisiensi penjerapan ammonium hidroksida pada permukaan zeolit akan meningkat dan akan mulai turun kembali pada pH 9 (Saltali *et al.*, 2006). Pencucian dengan menggunakan aquadest bertujuan agar kation - kation yang telah ditukar dapat terlarut dalam aquadest.

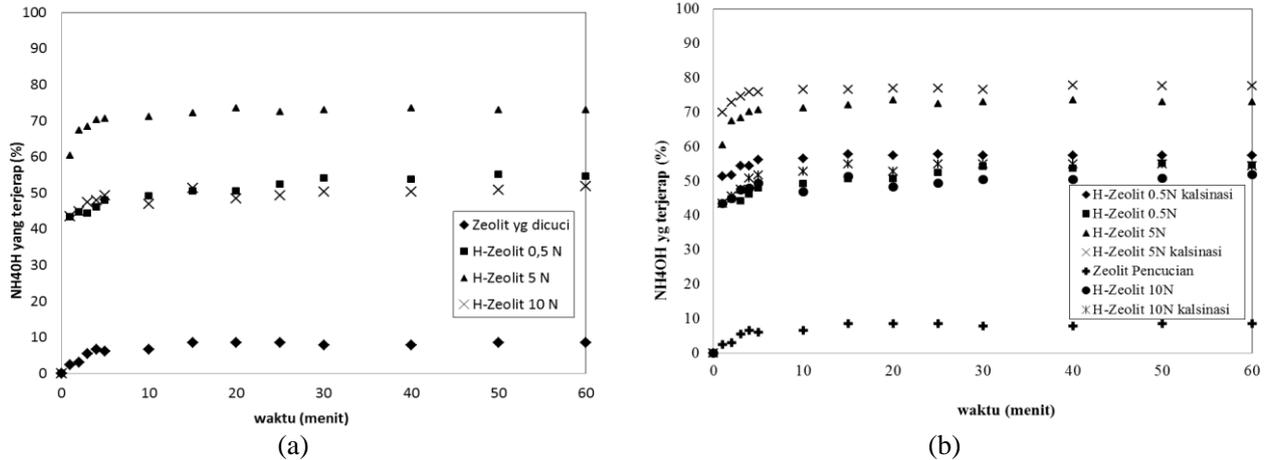
Proses adsorpsi dilakukan setelah zeolit telah mengalami pengaktifan. Penelitian ini dilakukan dengan menggunakan proses *batch* dengan melihat pengaruh penambahan waktu terhadap NH_4OH yang terjerap pada permukaan zeolit. Dari penelitian didapatkan hasil seperti pada gambar 1(a).

Pada gambar 1(a) terlihat bahwa konversi tertinggi diperoleh dengan menggunakan H-zeolit 5 N. Hal ini berbeda dengan penelitian yang dilakukan sebelumnya yang mengatakan bahwa H-zeolit 0,5 N mempunyai kemampuan lebih baik sebagai adsorben dan katalis, (Lusiana, 2008). Sedangkan konversi terendah diperoleh dengan menggunakan zeolit yang hanya dicuci dengan menggunakan *aquadest*. Hal ini mungkin disebabkan karena masih adanya pengotor yang tidak dapat terlarut dalam air yang masih tersisa dalam pori - pori zeolit.

Pada gambar 1 (a) juga terlihat bahwa pada menit pertama NH_4OH yang terjerap pada H-zeolit 5 N sebanyak 60,4651 %. Hal ini menunjukkan bahwa proses adsorpsi pada permukaan zeolit terjadi dengan sangat cepat. Sehingga dapat dikatakan bahwa tahanan

difusi dalam zeolit sangat rendah dan dapat diabaikan. Dalam waktu 30 menit NH_4OH yang terjerap mencapai 73% dan meningkat secara perlahan dengan bertambahnya waktu

adsorpsi. Setelah 22 jam NH_4OH yang terjerap mencapai 80,7907%. Seperti dikatakan pada penelitian yang dilakukan oleh Saltali (2006) bahwa dalam waktu 15



Gambar 1. Grafik Hubungan Waktu dan Konversi Pada Proses Adsorpsi Ammonia Pada Zeolit.

menit NH_4OH yang terjerap mencapai 75%, dan dalam waktu 30 menit mencapai 80%, dan akan bertambah dengan sangat lambat seiring dengan bertambahnya waktu penyerapan. Setelah 24 jam NH_4OH yang terjerap sebanyak 83%. Dari hasil tersebut waktu efektif untuk adsorpsi adalah 30 menit, karena proses adsorpsi NH_4OH setelah waktu setelah 30 menit dapat dikatakan tidak banyak berubah.

Selanjutnya zeolit yang telah diasamkan pada proses sebelumnya di kalsinasi hingga suhu mencapai 500°C dengan kenaikan suhu $1,5^\circ\text{C}/\text{menit}$. Kenaikan suhunya sebesar $1,5^\circ\text{C}/\text{menit}$ bertujuan untuk mencegah rusaknya struktur zeolit akibat perubahan suhu yang tiba-tiba dan dekomposisi senyawa-senyawa yang terlalu cepat. Hasil adsorpsi NH_4OH pada H-zeolit terkalsinasi dapat dilihat pada gambar 1(b).

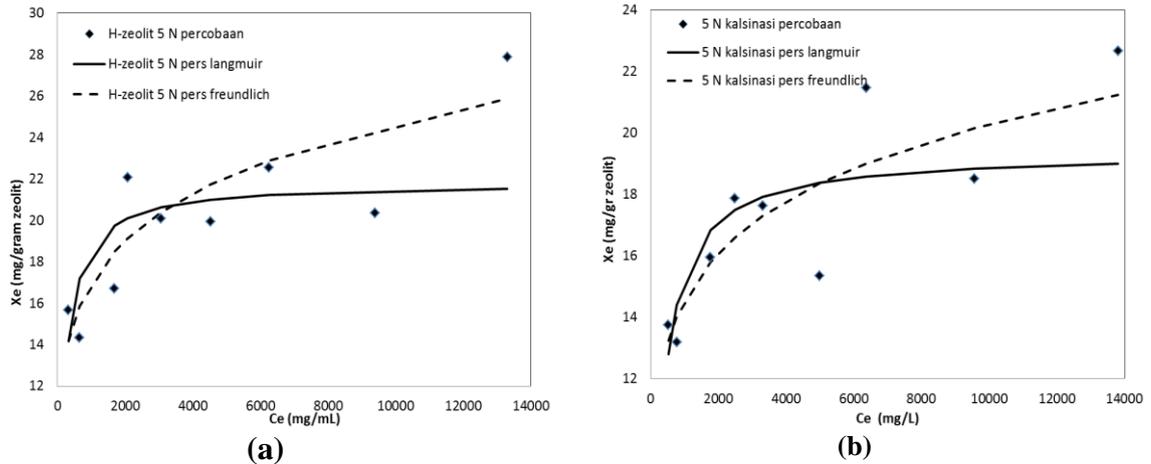
Dari gambar 1(b) terlihat bahwa H-zeolit yang telah mengalami proses kalsinasi memiliki kecenderungan yang sama dengan H-zeolit yang tidak mengalami proses kalsinasi, yaitu H-zeolit 5 N yang telah dikalsinasi dapat menyerap NH_4OH lebih banyak dibandingkan dengan H-zeolit 0,5 N dan H-zeolit 10 N yang telah dikalsinasi. Dari H-zeolit 5 N yang telah dikalsinasi diperoleh NH_4OH yang terjerap sebanyak 82.3548%.

Dari gambar 1(b) juga terlihat bahwa H-zeolit yang telah dikalsinasi memiliki kemampuan adsorpsi lebih baik dibandingkan dengan H-zeolit yang tidak dikalsinasi. Hal ini mungkin disebabkan karena HNO_3 yang tersisa pada zeolit pasca pencucian telah terdekomposisi menjadi NO_2 dan H_2O sehingga dapat memperluas pori-pori dalam zeolit. Oleh karena itu, kemampuan zeolit untuk mengadsorpsi NH_4OH menjadi lebih besar sehingga NH_4OH yang terjerap menjadi lebih banyak.

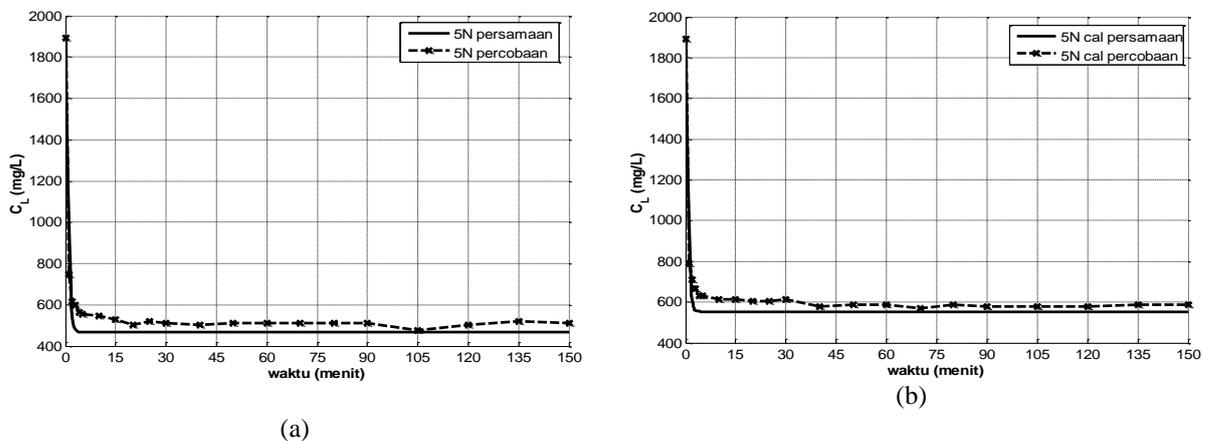
Seperti terlihat pada gambar 1, keadaan kesetimbangan telah tercapai ditandai dengan tidak berubahnya konsentrasi dengan bertambahnya waktu. Konsentrasi NH_4OH pada keadaan setimbang kemudian dievaluasi dengan menggunakan Persamaan kesetimbangan pada Persamaan (1) dan Persamaan (2). Persamaan-persamaan kesetimbangan tersebut berguna untuk memprediksi konsentrasi NH_4OH yang dapat terjerap oleh zeolit dan untuk mengetahui kemampuan optimal zeolit sebagai adsorben. Oleh karena itu persamaan tersebut sangat penting untuk mengevaluasi hasil percobaan yang telah dilakukan. Dari data percobaan diperoleh grafik seperti pada gambar 2.

Gambar 2 menunjukkan bahwa hubungan kesetimbangan antara konsentrasi NH_4OH dalam padatan dengan konsentrasi NH_4OH dalam cairan untuk H-zeolit 5N dan H-zeolit 5N dikalsinasi selama percobaan

mendekati Persamaan *Freundlich*. Nilai – nilai konstanta pada Persamaan Langmuir dan Persamaan *Freundlich* dapat terlihat pada tabel 1.



Gambar 2. (a) Grafik Kestimbangan Adsorpsi NH_4OH Pada H- Zeolit 5 N, (b) H-Zeolit 5N Kalsinasi.



Gambar 3. Grafik Hubungan antara Konsentrasi NH_4OH Terhadap Waktu (a) H-zeolit 5N, (b) H-zeolit 5N Kalsinasi.

Data kesetimbangan tersebut kemudian digunakan untuk menentukan konsentrasi NH_4OH dalam larutan setiap saat dengan menyelesaikan Persamaan (7). Persamaan (7) diselesaikan secara numeris dengan menggunakan program *Matlab* dan didapatkan hasil seperti pada gambar 3.

Pada Gambar 3 terlihat bahwa konsentrasi NH_4OH dalam cairan semakin menurun sampai waktu tertentu dan akan konstan setelah waktu optimumnya. Hal ini mendekati model matematis yang telah dibuat. Perbedaan yang terjadi antara hasil perhitungan dan percobaan disebabkan

karena sebenarnya di dalam zeolit terdapat tahanan difusi. Akan tetapi, pada model yang diajukan diasumsikan bahwa proses difusi diabaikan. Dari perhitungan menggunakan Persamaan *Wilke Chang* diperoleh harga koefisien difusivitas NH_4OH pada cairan adalah $1,4930 \times 10^{-6} \text{ dm}^2/\text{s}$ sedangkan harga koefisien difusivitas NH_4OH pada zeolit berkisar antara 10^{-9} sampai $10^{-10} \text{ dm}^2/\text{s}$. Nilai tersebut menunjukkan bahwa proses difusi di dalam cairan lebih cepat dibandingkan dengan difusi di dalam padatan. Untuk mengeliminasi proses difusi pada butiran padatan, maka pada penelitian kali ini butiran padatan dibuat sangat kecil sehingga tahanan

Tabel 1. Nilai Konstanta untuk Persamaan Langmuir dan Persamaan *Freundlich*

Persamaan <i>Langmuir</i>		Persamaan <i>Freundlich</i>	
H-Zeolit 5 N			
K (L/mg)	5,274 x10 ⁻³	k	5,582
b (mg/gr)	22,285	n	6,189
H-Zeolit 5N Kalsinasi			
K (L/mg)	3,776 x10 ⁻³	k	5,389
b (mg/gr)	19,358	n	6,950

Tabel 2. Data IR untuk *Mordernite*

Tipe Zeolite	<i>Asymmetrical Stretch</i>		<i>Symmetrical Stretch</i>		<i>Double Ring</i>	T-O bend
	<i>External</i>	<i>Internal</i>	<i>External</i>	<i>Internal</i>		
<i>Mordernite</i>	1223	1045	800	720	580, 560	450

difusi menjadi rendah. Oleh karena itu, proses difusi di dalam padatan dapat diabaikan. Dari analisis FTIR vibrasi *framework* zeolit (*stretching and bending*) dapat terlihat pada daerah mid-IR dan far-IR. Untuk *asymmetrical stretching mode* ($\leftarrow\text{OTO}\rightarrow$) terletak pada 1250 – 950 cm⁻¹, *symmetrical stretching* ($\leftarrow\text{OTO}\rightarrow$) terletak pada 790 – 650 cm⁻¹, sedangkan untuk T-O *bending mode* terletak pada 500–420 cm⁻¹. Sedangkan untuk group OH pada zeolit terlihat pada daerah 3600 – 3650, (Auerbach *et al.*, 2003). Dari analisis FTIR yang dilakukan pada penelitian ini diperoleh hasil seperti pada gambar 4. Dari gambar tersebut dapat terlihat bahwa zeolit yang berasal dari Gunung Kidul merupakan jenis *mordernite*. Data IR untuk jenis *mordernite* dapat dilihat pada Tabel 2 (Auerbach *et al.*, 2003).

Dari analisis FTIR diperoleh data seperti pada gambar 5. Dari Gambar tersebut terlihat

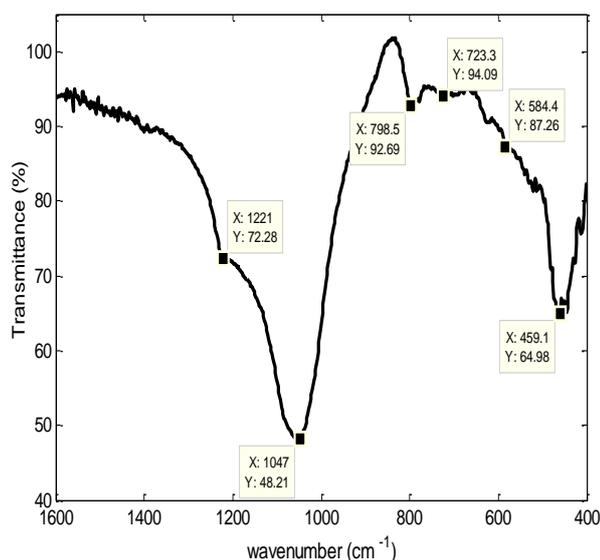
perbedaan antara zeolit yang hanya dicuci dan zeolit yang telah terdealuminasi. Untuk H-zeolit 0,5N terlihat memiliki daerah luasan OH paling kecil. Sedangkan untuk zeolit yang hanya dicuci dengan aquadest memiliki daerah OH dengan luasan yang lebih besar dibanding dengan H-zeolit 0,5N. Hal ini mungkin disebabkan karena zeolit tersebut mengikat air sehingga ikatan OH yang terbaca pada FTIR menjadi besar. Hal tersebut menyebabkan kapasitas zeolit untuk mengadsorpsi NH₄OH menjadi berkurang karena ruang untuk menjerap NH₄OH digunakan untuk mengikat air. Dari gambar 5 terlihat juga bahwa terdapat perbedaan antara zeolit yang sebelum proses adsorpsi dan setelah proses adsorpsi. Pada zeolit setelah proses adsorpsi terlihat adanya *peak* baru pada kisaran 3200 – 3300 dan 1350 – 1450 cm⁻¹. Dari hasil analisis FTIR *stretching vibrations* ion ammonium pada zeolit

terlihat pada 3300 cm^{-1} dan pada 1450 cm^{-1} untuk ikatan NH, (Auerbach *et al.*, 2003).

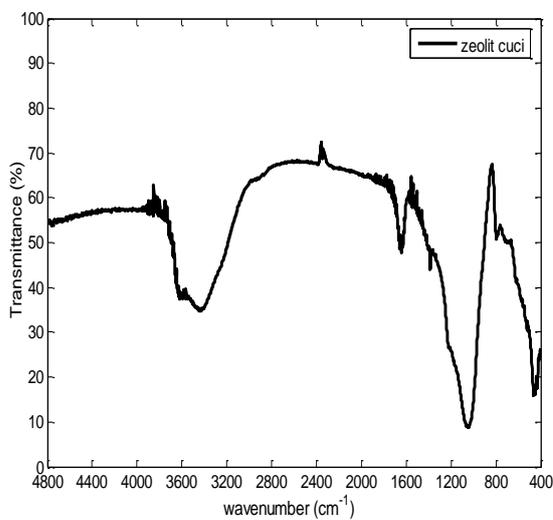
Oleh karena itu dapat dikatakan bahwa mekanisme proses adsorpsi NH_4OH pada zeolit adalah ion ammonium dari NH_4OH berinteraksi dengan gugus OH *Brønsted* yang terdapat pada zeolit, seperti yang terlihat pada gambar 6.

Spektrum *vibrasi infra - red* untuk zeolit yang mengalami proses kalsinasi dapat dilihat pada gambar 7. Dari gambar tersebut

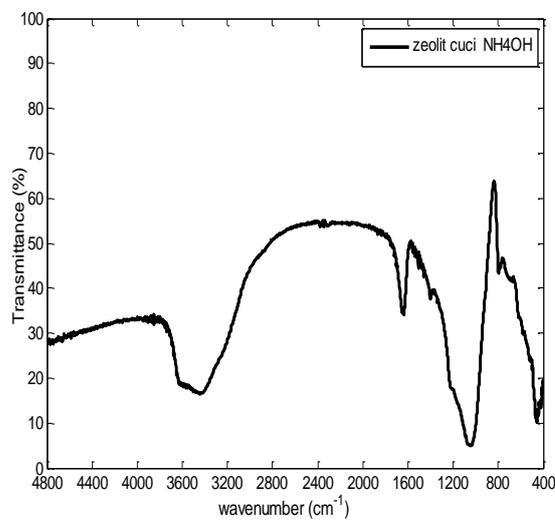
terlihat bahwa proses kalsinasi tidak merubah struktur dari zeolit, proses kalsinasi hanya mendekomposisi HNO_3 menjadi NO_2 dan H_2O sehingga dapat memperluas pori – pori dalam zeolit yang sebelumnya masih terisi oleh HNO_3 . Oleh karena itu, kapaitas zeolit untuk mengadsorpsi NH_4OH menjadi lebih besar sehingga NH_4OH yang terjerap menjadi lebih banyak.



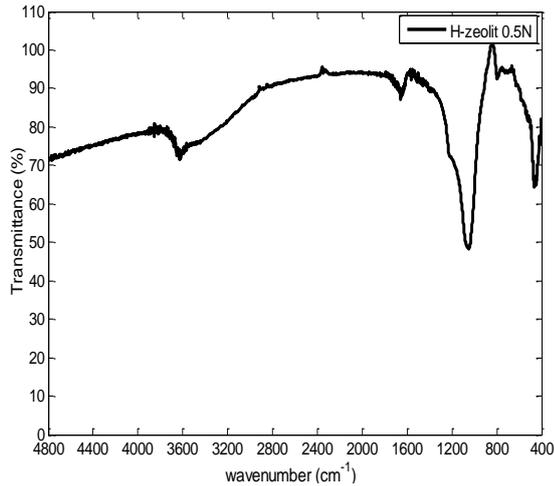
Gambar 4. *Vibrations of Zeolite Mordenite*



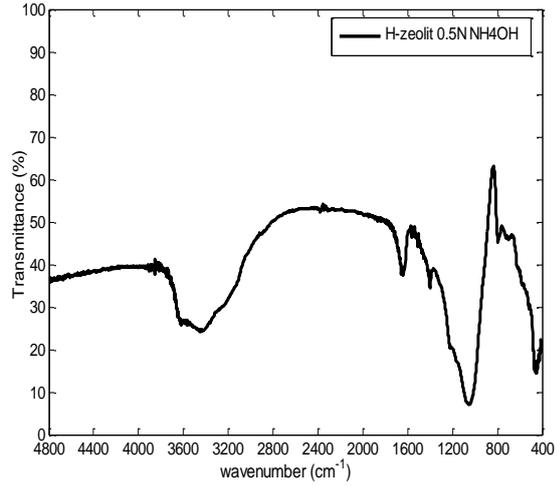
(a) Zeolit dicuci



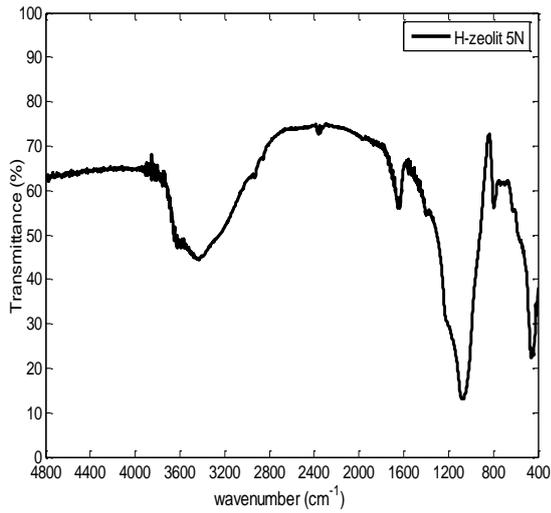
(b) Zeolit dicuci direndam NH_4OH



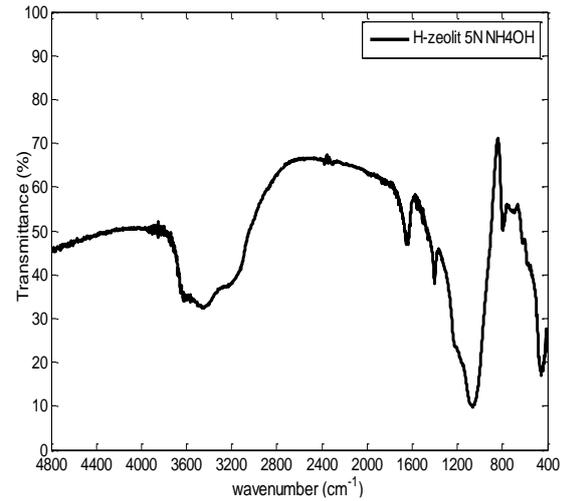
(c) H-Zeolit 0,5 N



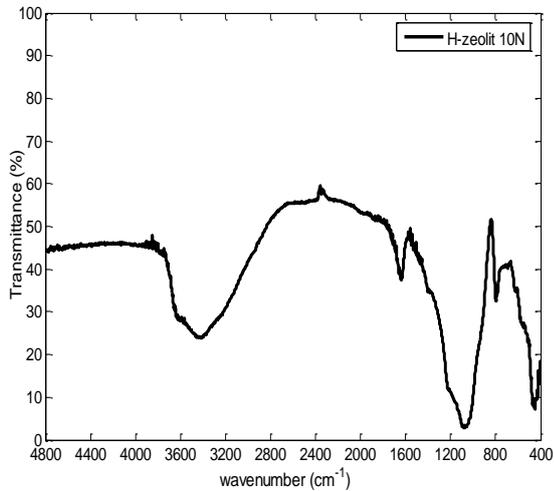
(d) H-Zeolit 0,5 N direndam NH₄OH



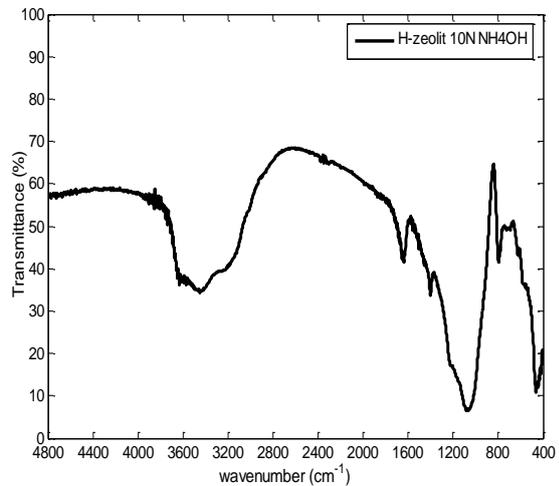
(e) H-Zeolit 5 N



(f) H-Zeolit 5 N direndam NH₄OH

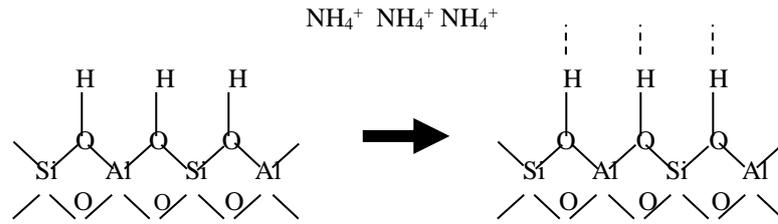


(g) H-Zeolit 10N

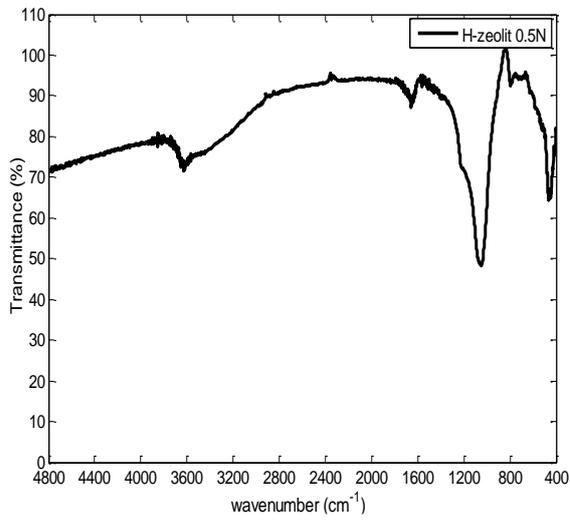


(h) H-Zeolit 10 N direndam NH₄OH

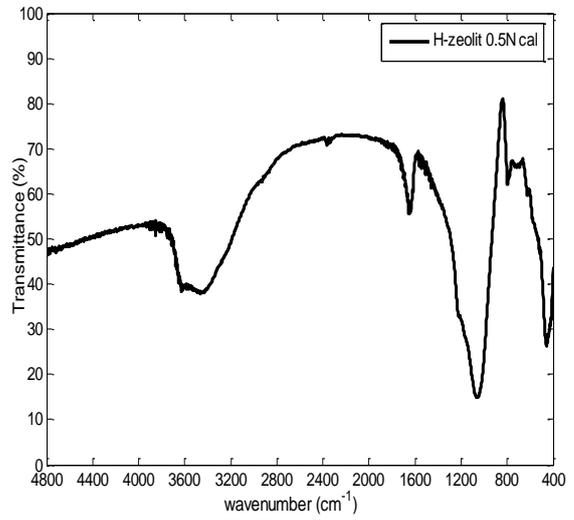
Gambar 5. Hasil Analisis FTIR untuk Zeolit Sebelum dan Setelah Direndam NH₄OH.



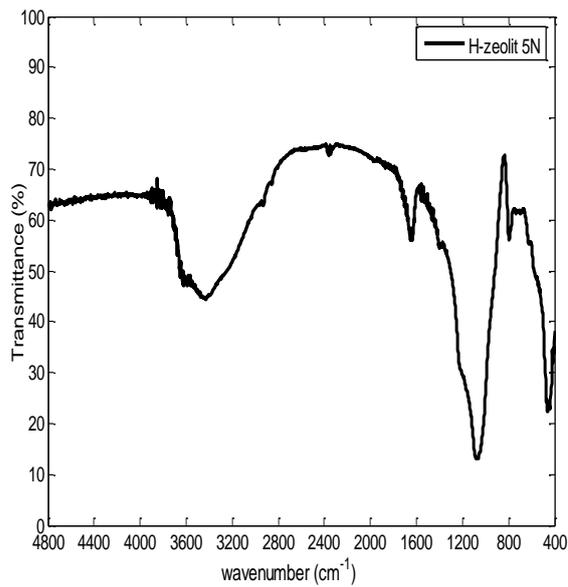
Gambar 6. Mekanisme Adsorpsi NH_4OH pada Zeolit.



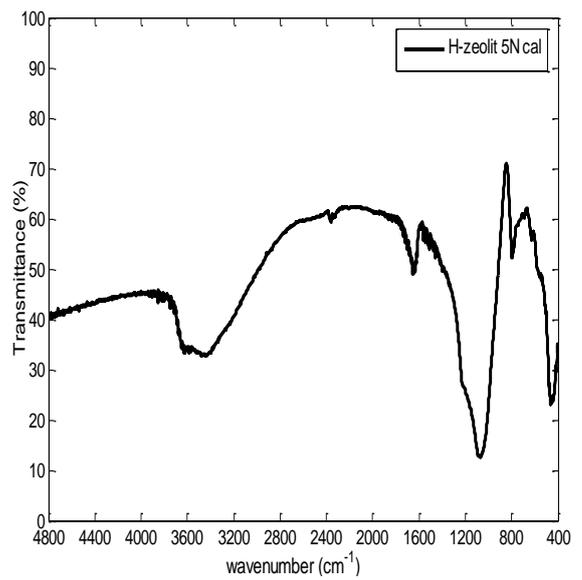
(a) H-Zeolit 0,5 N



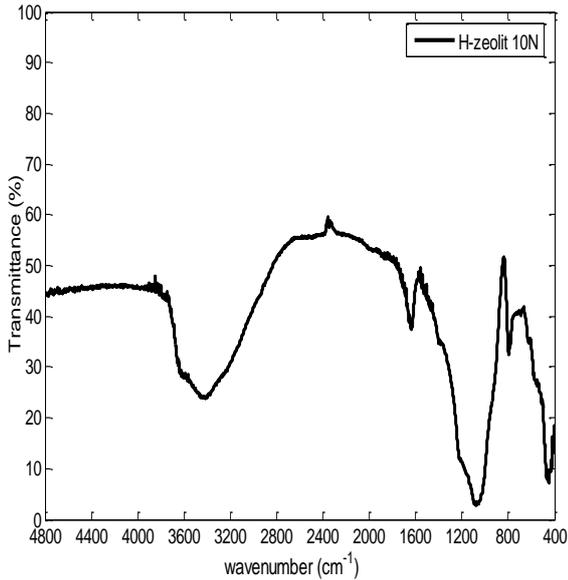
(b) H-Zeolit 0,5 N kalsinasi



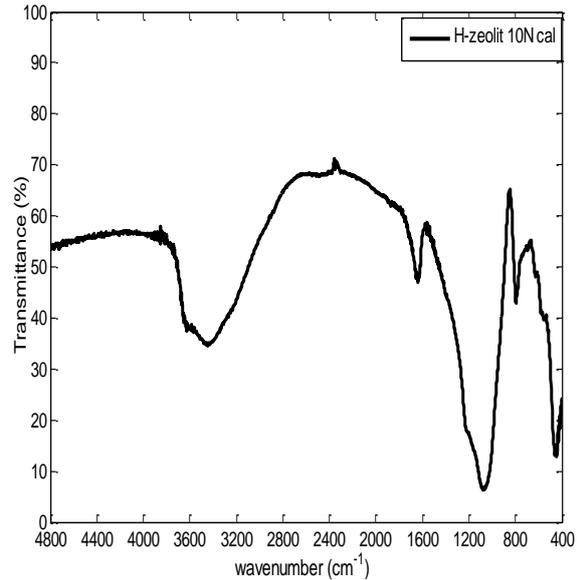
(c) H-Zeolit 5 N



(d) H-Zeolit 5 N kalsinasi



(e) H-Zeolit 10 N



(f) H-Zeolit 10 N kalsinasi

Gambar 7. Hasil Analisis FTIR untuk Zeolit Sebelum dan Setelah Proses Kalsinasi.

4. KESIMPULAN

Dari penelitian yang dilakukan, disimpulkan bahwa amonium hidroksida yang terjerap pada zeolit alam meningkat seiring dengan meningkatnya tingkat dealuminasi dan mencapai maksimum pada tingkat dealuminasi dalam larutan HNO_3 5N. Amonium hidroksida yang terjerap akan semakin meningkat seiring meningkatnya waktu proses adsorpsi. Amonium hidroksida yang terjerap akan meningkat pada zeolit yang mengalami proses kalsinasi. Adsorpsi amonium hidroksida pada zeolit terdealuminasi terjadi pada puncak gugus OH *Brønsted*.

Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terima kasih sebesar-besarnya kepada DPPM UII yang telah mendanai penelitian ini melalui skema penelitian AIPT.

Daftar Lambang

- φ_B = Faktor Asosiasi *Solven* (untuk air 2,26).
- μ_A = Viskositas NH_4OH (kg/m.s).
- C_e = Konsentrasi NH_4OH Dalam Cairan Pada Saat Kesetimbangan (mg/L).
- C_L = Konsentrasi NH_4OH Dalam Cairan (mg/L).
- C_o = Konsentrasi NH_4OH Dalam Cairan Mula - mula (mg/L).
- C_s = Konsentrasi NH_4OH di permukaan Padatan (mg/L).
- D_{AB} = Koefisien Difusivitas Solut A (NH_4OH) Dalam *Solven* B (air) (m^2/s).
- dp = Diameter Partikel Zeolit (dm).
- k_L = Konstanta Transfer Massa Pada Larutan.
- M_B = Berat Molekul *Solven* B (air) (kg/kgmol).
- N_b = Jumlah Butir Zeolit.
- T = Suhu Percobaan (K).
- t = Waktu Adsorpsi (menit).
- w = Berat Zeolit (gram).
- V = Volume Larutan NH_4OH (mL).
- V_A = Volume Molal Solut (NH_4OH) Pada Titik Didih Normal.
- X_e = Konsentrasi NH_4OH Dalam Padatan Pada Saat Kesetimbangan (mg/gr zeolit).

DAFTAR PUSTAKA

- Auerbach, S., 2003. Carrado, K., and Dutta, P.K, "Handbook of Zeolite Science and Technology", Marcel Dekker, Inc., New York.
- Kirk, R.E. and Othmer, D.E,1951, "*Encyclopedia of Chemical Technology*, vol.5, pp.781-790, Interscience Incyclopedia Inc., New York.
- Lusiana, O, 2008. "Pemanfaatan Zeolit Alam Sebagai Adsorben Dan Katalis Yang Bersifat Asam", Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, UGM, Yogyakarta..
- Perry, R.H., and Green, D.W, 1997. "Perry's Chemical Engineers Handbook", 7ed., pp. 16-8 – 16-15, McGraw Hill Book Company, Inc., New York..
- Saltali, K., Sari, A., and Aydin, M, 2007. "*Removal of ammonium ion from aqueous solution by natural Turkish (Yildizeli) zeolite for environmental quality*", *Journal of Hazardous Materials.*, 141, 258–263.
- Treybal, R.E, 1981. "Mass Transfer Operation", 3ed., pp. 106-110, McGrawHill Book Comapny, Inc., New York.
- Wang, Y.F., Lin, F.,Pang, W.Q, 2007. "*Ammonium exchange in aqueous solution using Chinese natural clinoptilolite and modified zeolite*", *Journal of Hazardous Materials.*, 142, 160–164.