

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1. Karakterisasi Zeolit Alam dan Zeolit Alam Diaktivasi

Salah satu persiapan yang dilakukan yaitu aktivasi zeolit alam secara kimia dengan menggunakan H_2SO_4 0,5 M selama 2 jam. Untuk menunjang hasil pembahasan adsorpsi Cr(VI) dengan zeolit alam yang telah diaktivasi maka dilakukan beberapa karakterisasi terhadap zeolit sebelum digunakan sebagai adsorben. Berikut ini hasil berbagai karakterisasi dari zeolit alam.

4.1.1. Karakterisasi BET

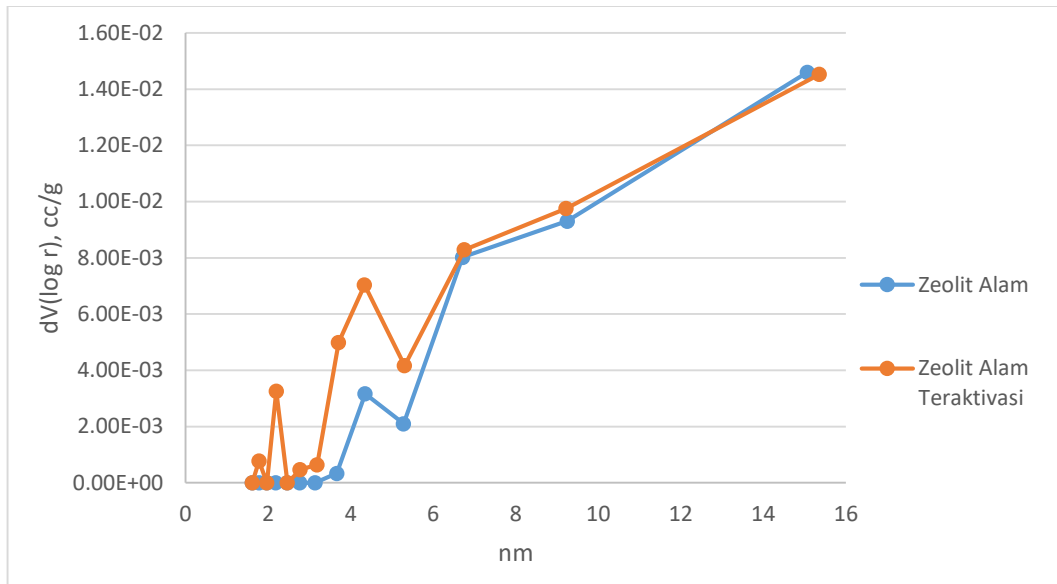
Karakterisasi dengan BET digunakan untuk mengetahui beberapa karakteristik seperti *surface area* rata-rata, *volume* total, *pore radius*, distribusi pori dan mengetahui salah satu dari lima tipe isoterm yaitu isoterm tipe I, tipe II, tipe III, tipe IV, tipe V atau tipe VI.

Tabel 4.1. Tabel hasil karakterisasi BET terhadap zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi

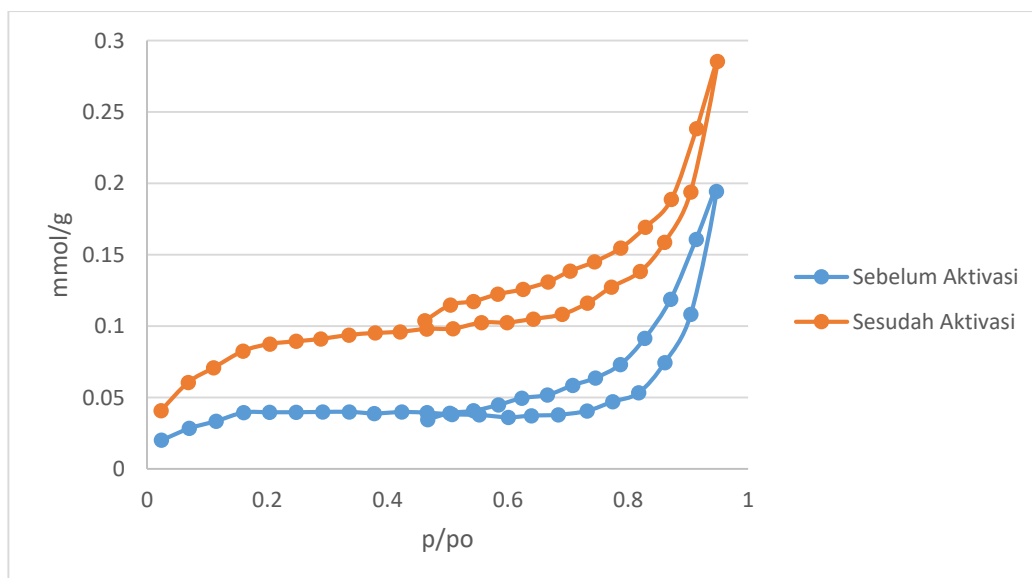
Jenis Zeolit	<i>Surface Area</i> Rata-Rata Efektif (m^2/g)	<i>Volume</i> Total (cc/g)	<i>Pore Radius</i> Rata-Rata (nm)
Zeolit Alam	2.94611	6.7486×10^{-3}	6.71334
Zeolit Alam Diaktivasi	6.77232	9.9107×10^{-3}	4.3355

Tabel 4.1 menunjukkan terjadi peningkatan *surface area* rata-rata efektif dan *volume* total dari zeolit alam ke zeolit alam diaktivasi. Hal ini menunjukkan bahwa proses aktivasi secara kimia dengan menggunakan H_2SO_4 0,5 M menyebabkan hilangnya pengotor yang akan dibuktikan pada hasil karakterisasi dengan XRF. Dengan meningkatnya nilai tersebut maka dimungkinkan adsorpsi dengan zeolit alam diaktivasi akan lebih baik. Penurunan *pore radius* rata-rata setelah proses aktivasi diakibatkan terbukanya pori-pori kecil yang sebelumnya tertutup oleh pengotor. Hal ini bisa dilihat pada gambar 4.1 yang menunjukkan distribusi pori zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi. Dari grafik dapat disimpulkan bahwa proses

aktivasi akan meningkatkan secara signifikan pada radius pori 2-6 nm. Peningkatan nilai radius pori pada rentan yang lebih kecil tersebut membuat rata-rata pori zeolit alam diaktivasi akan lebih kecil dibandingkan dengan zeolit alam sebelum diaktivasi.



Gambar 4.1 Grafik distribusi pori zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi



Gambar 4.2. Grafik *full isotherm* BET untuk zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi

Data lain yang akan didapatkan yaitu mengetahui salah satu dari lima tipe isotherm yaitu isotherm tipe I, tipe II, tipe III, tipe IV, tipe V atau tipe VI. Berdasarkan gambar 4.2 menunjukkan pola adsorpsi zeolit alam dan zeolit alam

diaktivasi yang sama. Pola yang ditunjukkan yaitu kenaikan jumlah nitrogen yang terserap pada tekanan relatif rendah, kemudian tidak terjadi kenaikan secara signifikan dibagian tengah dan kembali naik secara signifikan pada tekanan relatif mendekati nilai satu. Klasifikasi isoterm ini merupakan isoterm tipe IV, dimana jenis adsorpsi dari padatan berpori meso dengan ukuran pori pada rentang 2-50 nm (Gregg & Sing 1982). Pola *loop histerisis* ditekanan relatif pada rentang 0,55 sampai 0,8, yang berarti distribusi ukuran porinya hampir sama pada sekitar 3 – 6 nm (Choi et al. 2008). Berdasarkan karakter isoterm IV tersebut, zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi memiliki karakterisasi berpori meso.

4.1.2. Karakterisasi XRF

Berikut adalah hasil uji XRF dari zeolite alam sebelum dan sesudah aktivasi :

Tabel 4.2 Hasil uji XRF

Komponen	Zeolit Alam	Zeolit Alam
	Sebelum Aktivasi	Setelah Aktivasi
	Kadar %	Kadar %
Al	6.2	5.7
Si	26.4	34.5
P	1.1	0
S	0.9	6.2
K	3.29	3.4
Ca	34.2	19
Ti	1.23	1.31
V	0.05	0.03
Cr	0.17	0.05
Mn	1.3	1
Fe	21.3	16.4
Ni	0.057	0.03
Cu	0.13	0.094
Zn	0.15	0.11
Sr	0.4	0
Eu	0.1	0.2
Yb	0.08	0
Re	0.35	0.2

Secara umum zeolit yang terdapat di alam masih mengandung banyak pengotor-pengotor organik dan anorganik yang menutupi pori-pori dari zeolit, sehingga untuk meningkatkan kemampuan daya adsorpsinya

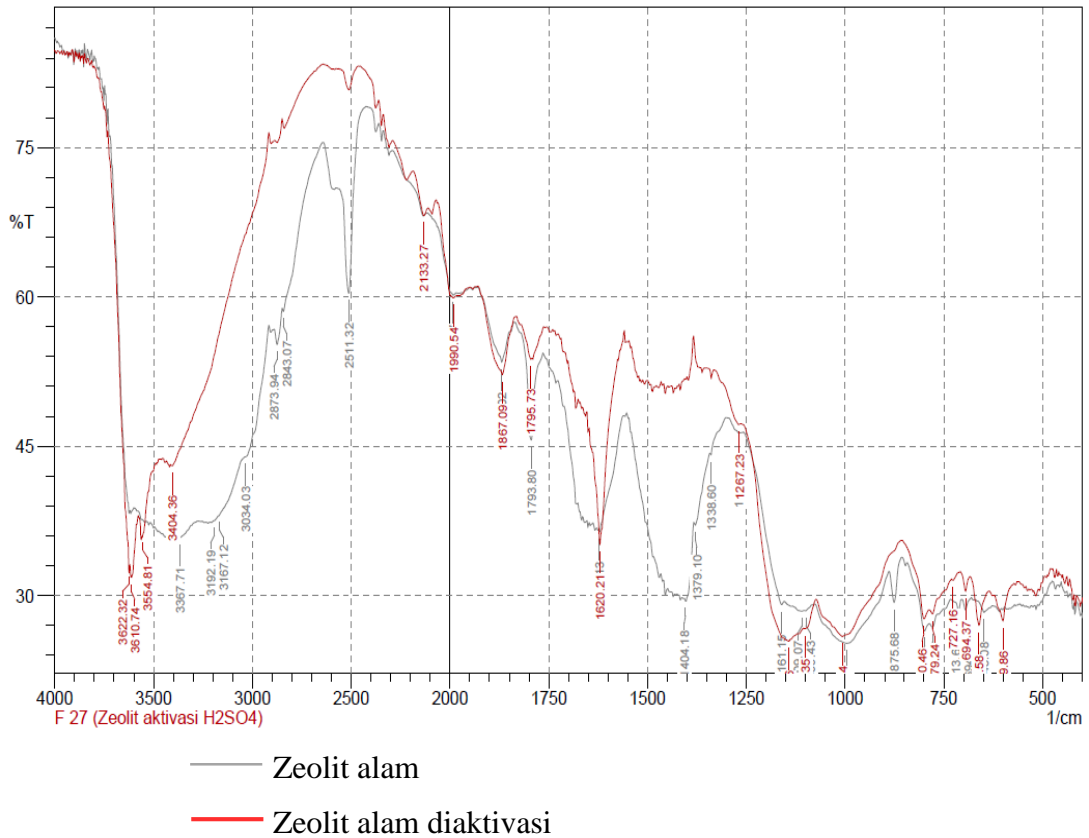
perlu dilakukan proses aktivasi terlebih dahulu (Khairinal dan Trisunaryanti, 2000).

Proses aktivasi kimia zeolit alam dapat dilakukan dengan asam atau basa yang memiliki tujuan meningkatkan daya adsorpsi, untuk proses aktivasi dengan asam akan mengakibatkan terjadinya demineralisasi yaitu ditandai dengan berkurangnya kandungan logam dan pengotor-pengotor anorganik yang menutup pori-pori pada zeolit alam (Jing, 2007). Semakin tinggi konsentrasi asam sulfat (H_2SO_4) sebagai aktivator maka semakin efektif dalam menghilangkan pengotor-pengotor pada permukaan zeolit. Hal ini menyebabkan luas permukaannya semakin meningkat dan daya adsorpsinya juga meningkat (Yusyniyah, 2017).

Berdasarkan tabel 4.2 diatas, dapat dilihat bahwa pada hasil uji XRF membuktikan terjadinya proses aktivasi secara kimia yang dilakukan melalui proses pengasaman menggunakan asam sulfat (H_2SO_4) sebesar 0,5 M untuk mengurangi pengotor-pengotor anorganik (Lestari, 2010). Pengotor yang berkurang berupa kation-kation di dalam zeolit alam. Kation tersebut berupa logam K, Ca, Fe, Mn. Selama proses perlakuan dengan asam, ion H^+ akan menggantikan kation-kation yang tidak terikat secara kuat di dalam kerangka zeolit dan mengatur kembali letak atom yang dapat dipertukarkan (Tarkan-Yel & Onen 2010). Yang perlu diperhatikan dalam hasil uji tersebut adalah meningkatnya komponen sulfur, hal ini disebabkan oleh proses aktivasi kimia menggunakan asam sulfat sehingga hasil analisa setelah aktivasi menunjukkan adanya peningkatan kandungan sulfur.

4.1.3. Karakterisasi FTIR

Adapun untuk hasil uji FT-IR zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi ditunjukkan pada Gambar 4.3 dan Tabel 4.3 dibawah ini. Hasil pengujian FT-IR menunjukkan bahwa zeolit yang digunakan pada penelitian ini memiliki gugus karboksilat saja, setelah diaktivasi menggunakan asam sulfat muncul gugus O-H ini disebabkan oleh ion H^+ pada asam sulfat yang bereaksi dengan gugus O pada Si-O sehingga mengubah Si-O menjadi Si-OH .



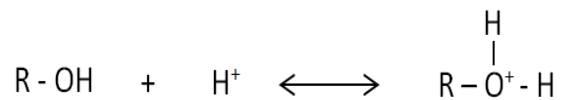
Gambar 4.3. Spektra IR zeolit alam dan zeolit alam diaktivasi

Tabel 4.3 Hasil pengujian FT-IR zeolit dan zeolit diaktivasi

No	Gugus	Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)	Sampel	
			Zeolit	Zeolit Diaktivasi
1	C-O Alkohol/ eter/ asam karboksilat/ ester	1050-1300	✓	✓
2	O-H Alkohol hidrogen / fenol	3200 – 3650	-	✓
3	O-H Alkohol monomer / fenol	3590-3650	-	✓

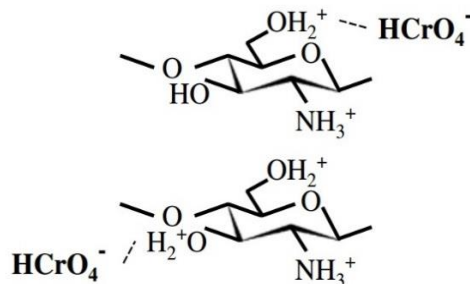
4.2. Mekanisme Adsorpsi

Pada larutan dengan $\text{pH} < 5$, Cr(VI) lebih cenderung membentuk ion HCrO_4^- (Gueye, 2014). pH larutan untuk adsorpsi didapatkan sekitar 4 sampai 4,2. Menurut Jung dkk., (2013) mekanisme adsorpsi Cr(VI) oleh zeolit dapat meningkatkan interaksi elektrostatis antara gugus permukaan $-\text{OH}$, dan $-\text{COOH}$ (yang telah terprotonasi) dengan Cr(VI) yang dominan berwujud sebagai HCrO_4^- . Interaksi elektrostatis tersebut menimbulkan reaksi adsorpsi secara kimiawi (kemisorpsi). Semakin rendah pH maka akan semakin banyak ion H^+ dan membuat semakin banyak mengalami protonasi gugus, sehingga berpengaruh pada adsorpsi Cr(VI) (Park, 2004). Adapun contoh reaksi protonasi :



Gambar 4.4 Skema protonasi (Wade, 2013)

Adapun interaksi yang terbentuk antara gugus yang telah terprotonasi dengan Cr(VI) yaitu:

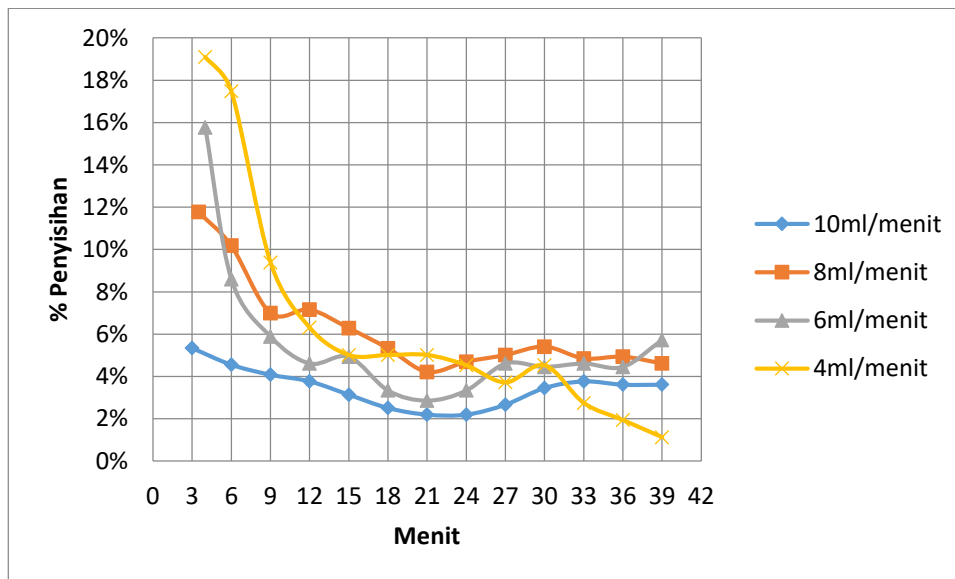


Gambar 4.5 Mekanisme reaksi HCrO_4^- dengan gugus $-\text{OH}$, dan $-\text{COOH}$ (Jung, 2013)

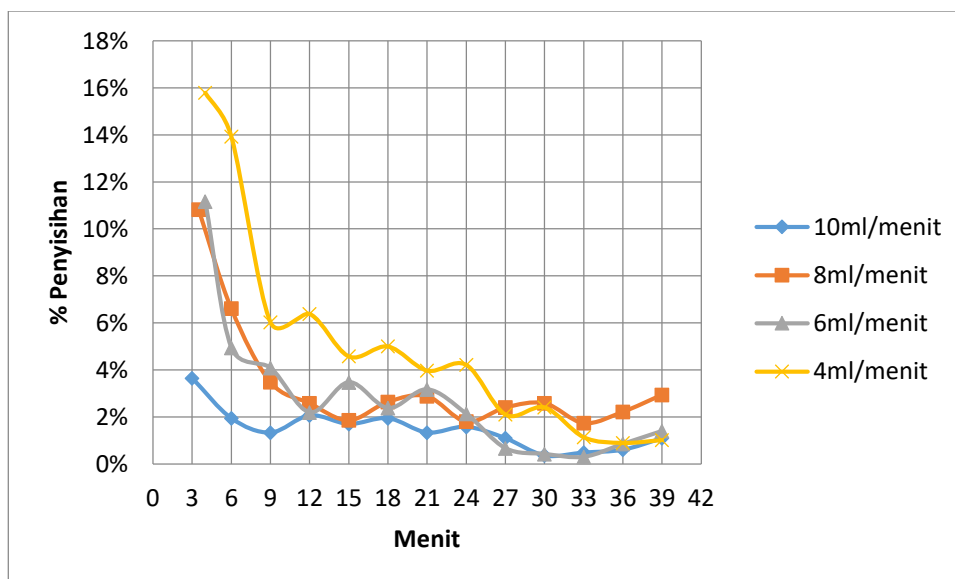
4.3. Pengaruh Konsentrasi Awal Larutan Cr(VI) dan Kecepatan Laju Alir dalam Kolom terhadap Adsorpsi dengan Zeolit Alam Diaktivasi

Limbah penyamakan kulit menghasilkan limbah Cr(VI) pada kisaran konsentrasi 80 ppm, sehingga penelitian ini menggunakan limbah sintetis Cr(VI) dengan konsentrasi 60, 80 dan 100 ppm. Proses adsorpsi secara kontinyu pada kolom adsorpsi memiliki faktor yang paling berpengaruh yaitu waktu tinggal dalam kolom. Waktu tinggal dalam kolom dikorelasikan dengan kecepatan laju alir umpan yang masuk ke dalam kolom. Semakin cepat laju alirnya maka waktu tinggal dalam kolom akan

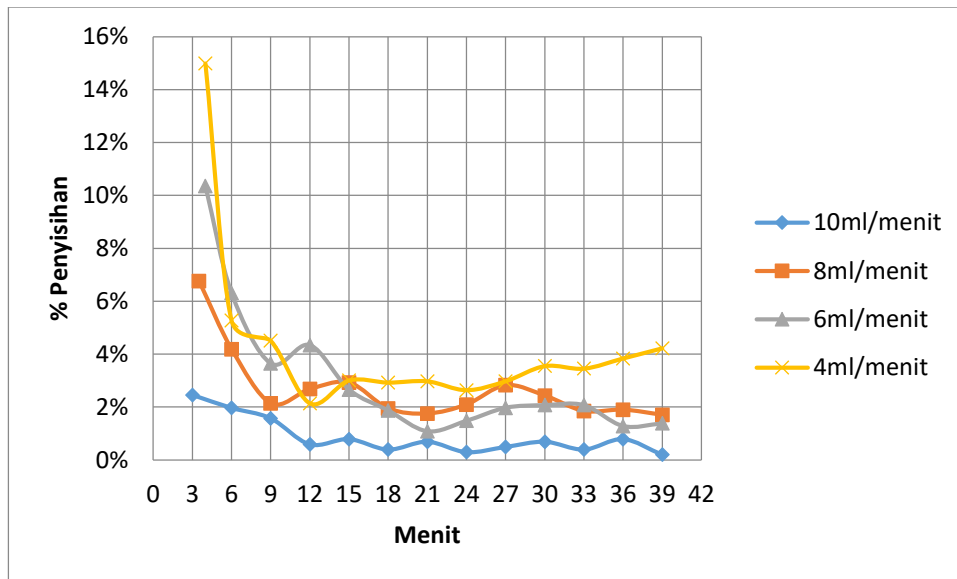
semakin singkat (Fogler, 1992). Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui kondisi optimum untuk mendapatkan persen penyisihan yang paling baik.



Gambar 4.6 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada konsentrasi awal 60 ppm dengan berbagai laju alir

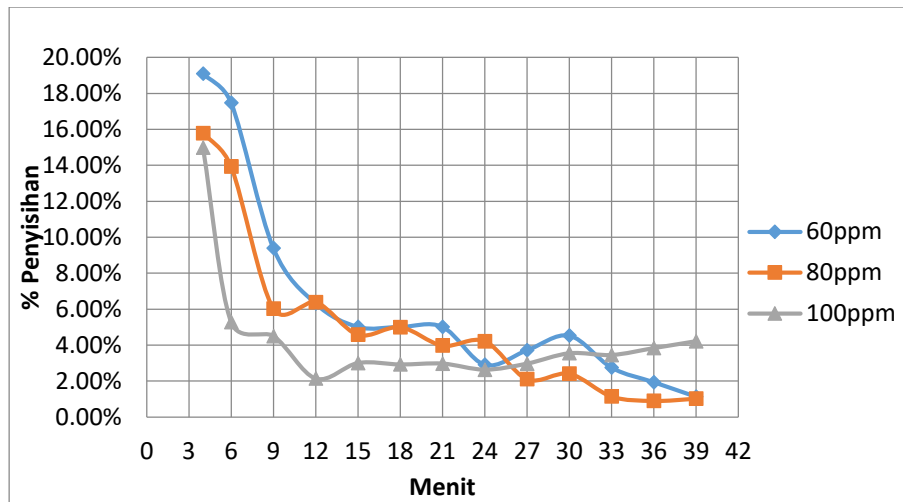


Gambar 4.7 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada konsentrasi awal 80 ppm dengan berbagai laju alir

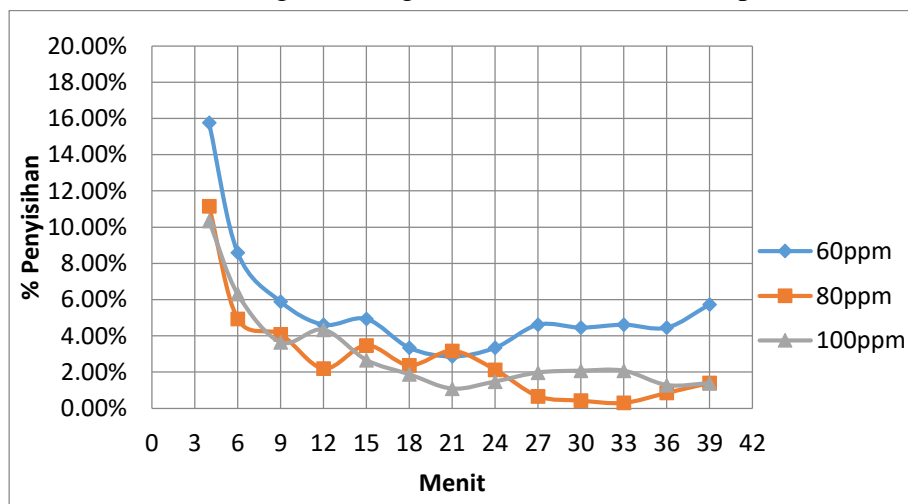


Gambar 4.8 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada konsentrasi awal 100 ppm dengan berbagai laju alir

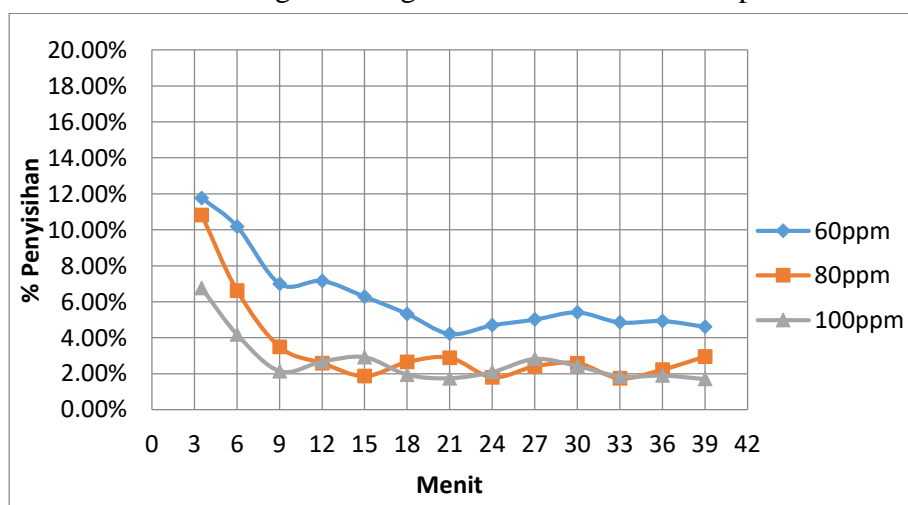
Gambar-gambar diatas menunjukkan pada berbagai variabel umpan dan berbagai laju alir memiliki persen penyisihan terbesar pada keluaran *sampling* pertama kolom adsorpsi. Hal ini dikarenakan zeolit alam diaktivasi yang digunakan sebagai adsorben dalam kondisi belum ada Cr(VI) yang teradsorb. Seiring berjalannya waktu persen penyisihan dari keseluruhan variabel akan menurun. Penurunan ini diakibatkan zeolit alam diaktivasi sebelumnya telah mengadsorb sebagian Cr(VI), sehingga sebagian tempat dalam adsorben telah terdapat Cr(VI). Semakin lama proses adsorpsi berlangsung konsentrasi keluaran kolom Cr(VI) akan mendekati dengan konsentrasi umpan Cr(VI). Namun secara keseluruhan terdapat data fluktuasi baik penurunan maupun peningkatan untuk persen penyisihannya. Hal ini dikarenakan zeolit alam diaktivasi yang digunakan memiliki karakterisasi interaksi antar adsorben dan adsorbatnya tergolong lemah, sehingga dimungkinkan selama proses elusi berlangsung ada sebagian Cr(VI) yang terlepas kembali. Terlepasnya Cr(VI) tersebut dapat membuat persen penyisihan berkurang.



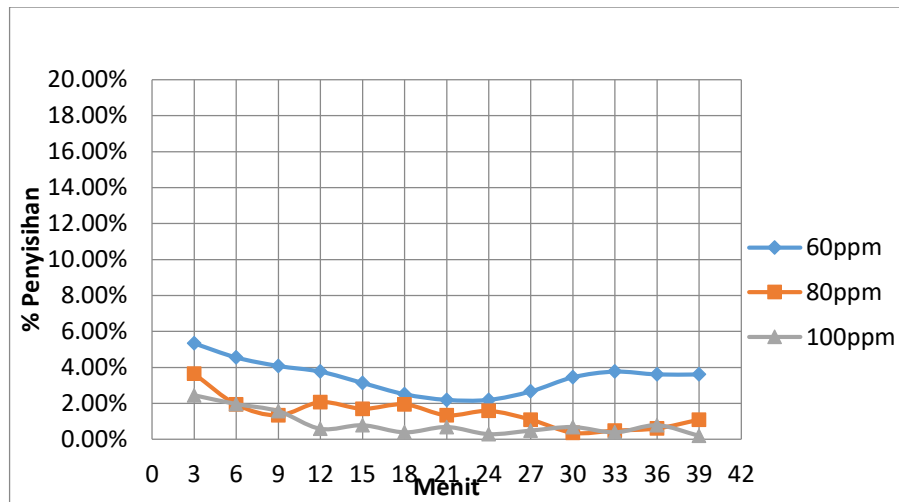
Gambar 4.9 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada laju alir 4 ml/menit dengan berbagai konsentrasi larutan umpan



Gambar 4.10 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada laju alir 6 ml/menit dengan berbagai konsentrasi larutan umpan



Gambar 4.11 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada laju alir 8 ml/menit dengan berbagai konsentrasi larutan umpan



Gambar 4.12 Persen penyisihan Cr(VI) dengan zeolit alam diaktivasi pada laju alir 10 ml/menit dengan berbagai konsentrasi larutan umpan

Dari data persen penyisihan, dapat ditarik kesimpulan bahwa untuk kondisi optimum adsorpsi untuk variabel dengan konsentrasi larutan umpan Cr (VI) terkecil yaitu 60 ppm dan kecepatan laju alir terkecil pula yaitu 4ml/menit. Semakin kecil laju alirnya maka waktu tinggal dalam kolom akan semakin lama (Fogler, 1992), sehingga adsorpsi berjalan lebih lama dan persen penyisihan semakin besar. Kondisi optimum pada larutan umpan terkecil ini sesuai pada referensi Vargas dkk., (2012) yang menyatakan bahwa persentase penyisihan berbanding terbalik dengan semakin tingginya konsentrasi larutan. Semakin kecil konsentrasi awal larutan (C_0) Cr(VI), maka pada setiap 1 gram sisi aktif adsorben akan dapat lebih banyak mengikat Cr(VI) dibanding dengan konsentrasi larutan Cr(VI) yang tinggi. Pada konsentrasi larutan yang rendah, partikel adsorbat akan mudah bergerak sehingga mudah untuk teradsorpsi, sedangkan pada konsentrasi larutan yang tinggi, partikel adsorbat saling menghalangi sehingga sulit untuk teradsorpsi (Liu, 2007).