

PENURUNAN KADAR TIMBAL(II) MENGUNAKAN ZEOLIT-X SINTETIS DARI BATU PADAS

Irwanda Pratama^{1*}, Lia Destiarti¹, Nurlina¹

¹Program Studi Kimia, Fakultas MIPA, Universitas Tanjungpura,
Jln. Prof. Dr. H. Hadari Nawawi 78124, Pontianak

*email: irwandapratama89@gmail.com

ABSTRAK

Timbal merupakan logam berat yang sering digunakan sebagai bahan campuran dalam industri. Keberadaan timbal dalam bentuk ionnya sebagai limbah dari industri berpotensi menyebabkan pencemaran lingkungan. Pencemaran ion timbal di lingkungan dapat diatasi dengan menggunakan adsorben yang tepat. Pada penelitian ini bertujuan menjelaskan penurunan kadar timbal(II) menggunakan zeolit X sintetis dari batu padas. Sintesis zeolit X dari batu padas dilakukan menggunakan metode peleburan batu padas dengan NaOH kemudian ditambahkan NaAl(OH)₄. Proses sintesis dilakukan secara hidrotermal pada suhu 100°C selama 12 jam. Zeolit X hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan XRD (X-Ray Diffraction). Kemampuan zeolit X sintetis sebagai adsorben diuji untuk menurunkan kadar Pb(II) dengan variasi parameter yaitu waktu kontak, massa adsorben, dan konsentrasi adsorbat sebagai kondisi optimum dalam penentuan kapasitas adsorpsinya. Hasil analisis XRD menunjukkan adanya puncak khas zeolit X pada sudut 2θ dan d spacing 30,939°-2,888 Å; 26,652°-3,341 Å; dan 23,296°-3,815 Å. Hasil penelitian menunjukkan bahwa adsorpsi zeolit X sintetis terhadap Pb(II) berlangsung pada waktu kontak optimum 120 menit dengan persen efektivitas penurunan konsentrasi Pb(II) sebesar 99,45%. Massa optimum zeolit X sintetis yang diperlukan sebanyak 1,5 gram dengan persen efektivitas penurunan konsentrasi Pb(II) sebesar 97,49%. Adsorpsi zeolit X sintetis terhadap Pb(II) sesuai dengan model isoterm adsorpsi Langmuir dengan kapasitas adsorpsi sebesar 7,633 mg/g.

Kata Kunci :zeolit X, sintetis, timbal, hidrotermal, batu padas

PENDAHULUAN

Timbal (Pb) merupakan logam berat yang lunak dan tahan terhadap korosi atau karat, sehingga sering digunakan sebagai bahan pelapis pada konstruksi pabrik-pabrik kimia, dan alat-alat mekanik. Timbal dalam industri baterai digunakan sebagai bahan aktif untuk pengaliran arus elektron. Timbal dapat masuk ke perairan sebagai dampak dari aktivitas kehidupan manusia, diantaranya melalui air buangan limbah dari industri yang berkaitan dengan Pb, air buangan limbah dari pertambangan bijih timah hitam, dan sisa air dari industri baterai. Limbah tersebut berpotensi menyebabkan pencemaran air. Berdasarkan Peraturan Pemerintah Republik Indonesia Nomor 82 Tahun 2001 tentang Pengolahan Kualitas Air dan Pengendalian Pencemaran Air, keberadaan Pb dalam air diharapkan nihil. Batas maksimal Pb yang dibolehkan di air

adalah 0,01 ppm (Peraturan Menteri Kesehatan Nomor 492 Tahun 2010). Kadar Pb yang melebihi batas maksimal dapat bersifat toksik bagi semua organisme hidup.

Upaya pencegahan maupun penanggulangan pencemaran Pb perlu dilakukan. Penurunan logam berat dapat dilakukan dengan metode adsorpsi menggunakan zeolit. Penelitian yang telah dilakukan Kabwadza-Corner dkk. (2015) menunjukkan bahwa zeolit X dari industri perusahaan *Wako Pure Chemicals Industries Japan* telah terbukti dapat mengadsorpsi logam Pb hingga 100%, sedangkan pada konsentrasi logam Pb yang lebih tinggi, zeolit X mengadsorpsi sebesar 69% dari konsentrasi awal logam Pb. Shaila dkk. (2015) telah berhasil mensintesis zeolit X dari abu terbang batubara untuk mengadsorpsi logam Ni.

Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa zeolit sintetis dapat mengadsorpsi logam Ni sebesar 92,42% dari konsentrasi awal logam Ni.

Zeolit X dapat disintesis dari bahan yang mengandung sumber silika dan alumina. Material alam yang mempunyai kandungan silika yang tinggi dipilih dalam pemanfaatannya sebagai bahan dasar pembuatan zeolit. Trivana (2013) memanfaatkan kaolin dengan kadar silika mencapai 48,03% dalam mensintesis zeolit X, sedangkan Aditama (2015) memanfaatkan abu vulkanik dengan kadar silika 35,30% sebagai bahan dasar mensintesis zeolit X.

Salah satu potensi sumber daya alam di Kalimantan Barat yang kaya akan kandungan silika adalah batu padas. Berdasarkan hasil XRF batu padas mengandung 60,90% silika. Berdasarkan potensi kandungan silika yang dimilikinya, batu padas dapat dimanfaatkan untuk mensintesis zeolit X. Zeolit X sintetis kemudian digunakan untuk adsorpsi Pb(II) dengan variasi parameter yaitu waktu kontak, massa adsorben, dan konsentrasi adsorbat sebagai kondisi optimum dalam penentuan kapasitas adsorpsinya.

METODOLOGI PENELITIAN

Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan pada penelitian ini adalah alat-alat gelas, tanur, oven, botol *polyetilen*, *magnetic stirrer*, *shaker*, neraca analitik, indikator universal, kertas saring Whatman 41, serta instrumen *X-Ray Diffraction* (XRD) KENZA, *X-Ray Fluorescence* (XRF) PANalytical Epsilon 3, dan *Atomic Absorption Spectroscopy* (AAS) Shimadzu AA-7000.

Bahan-bahan yang digunakan adalah batu padas dari Desa Sukaharja Kabupaten Ketapang Provinsi Kalimantan Barat, akuades (H_2O), aluminium oksida (Al_2O_3), natrium hidroksida (NaOH), dan timbal nitrat ($Pb(NO_3)_2$).

Prosedur Penelitian

Preparasi dan karakterisasi batu padas

Preparasi dan karakterisasi batu padas merujuk pada penelitian Yani dkk. (2013). Sampel batu padas dihancurkan dan diayak dengan ayakan 100 mesh. Batu padas halus yang diperoleh dicuci,

kemudian diambil residunya dan dikeringkan. Residu yang diperoleh dikalsinasi dalam tanur pada suhu $600^\circ C$ selama 2 jam. Padatan hasil kalsinasi dihaluskan dan diayak hingga menjadi serbuk. Serbuk batu padas hasil pencucian dan kalsinasi kemudian dikarakterisasi menggunakan XRF.

Sintesis zeolit X

Sintesis zeolit X dilakukan dengan mereaksikan larutan natrium silikat dan larutan natrium aluminat. Natrium silikat dibuat berdasarkan prosedur pada penelitian Kurniawati (2010). Sebanyak 42,8 gram batu padas hasil preparasi ditambah dengan 56,8 gram NaOH dalam 50 mL akuades. Campuran dikalsinasi dalam tanur pada suhu $600^\circ C$ selama 2 jam. Padatan yang terbentuk dilarutkan dalam 100 mL akuades. Setelah itu, dilakukan pembuatan natrium aluminat yang merujuk pada Ojha (2004) dalam penelitian Fitriyana dan Sulardjaka (2012). Sebanyak 20 gram NaOH dilarutkan dalam 100 mL akuades kemudian dipanaskan $100^\circ C$. Selanjutnya ke dalam larutan tersebut dimasukkan sebanyak 25,5 gram Al_2O_3 sedikit demi sedikit disertai pengadukan menggunakan *magnetic stirrer*.

Tahap selanjutnya yaitu dilakukan pencampuran larutan natrium silikat dan natrium aluminat. Campuran diaduk selama 2 jam sampai homogen. Campuran dimasukkan dalam botol *polyethylene* yang tertutup rapat, kemudian dipanaskan di dalam oven pada suhu $100^\circ C$ selama 12 jam. Padatan hasil kristalisasi dipisahkan dari filtratnya. Padatan kemudian dicuci hingga pH 9-10 dengan akuades, kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu $110^\circ C$ selama 6 jam. Zeolit X hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan XRD.

Penentuan waktu optimum adsorpsi Pb(II) pada zeolit X sintetis

Sebanyak 50 mL larutan Pb(II) 100 mg/L dalam setiap 5 buah botol ditambahkan masing-masing 0,5 gram zeolit X sintetis. Campuran dikocok menggunakan *shaker* selama 30, 60, 90, 120, dan 150 menit. Masing-masing campuran disaring dengan kertas saring, filtrat yang diperoleh ditentukan konsentrasi

larutan Pb(II) menggunakan *Absorption Spectroscopy* (AAS). Setiap perlakuan diulangi sebanyak 2 kali.

Penentuan massa optimum zeolit X sintetis terhadap adsorpsi Pb(II)

Sebanyak 50 mL larutan Pb(II) 100 mg/L dalam setiap 8 buah botol ditambahkan massa zeolit X sintetis dengan variasi 0,125; 0,25; 0,5; 0,75; 1; 1,25; 1,5; dan 1,75 gram. Campuran dikocok menggunakan *shaker* selama waktu optimum. Campuran disaring dengan kertas saring. Filtrat yang diperoleh ditentukan konsentrasi larutan Pb(II) menggunakan *Absorption Spectroscopy* (AAS). Setiap perlakuan diulangi sebanyak 2 kali.

Penentuan kapasitas adsorpsi zeolit X sintetis terhadap Pb(II)

Sebanyak 50 mL larutan Pb(II) dengan variasi konsentrasi 50, 100, 150, 200, 250 dan 300 mg/L dalam 6 buah botol ditambahkan masing-masing zeolit X sintetis dengan massa optimum. Campuran diaduk menggunakan *shaker* pada waktu kontak optimum, filtrat yang diperoleh ditentukan konsentrasi larutan Pb(II) menggunakan *Absorption Spectroscopy* (AAS). Setiap perlakuan diulangi sebanyak 2 kali.

Pengolahan data

Banyaknya Pb(II) yang teradsorpsi (mg/g) oleh adsorben ditentukan menggunakan persamaan:

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{w}$$

Kapasitas adsorpsi Pb(II) dapat dibuat kurva linier untuk menentukan isoterm adsorpsi yang sesuai dari persamaan Freundlich atau persamaan Langmuir. Bentuk linear dari isoterm Freundlich dalam grafik linier dengan mengalurkan $\log q_e$ terhadap $\log C_e$ ditunjukkan oleh persamaan:

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} \log C_e$$

Bentuk linier dari isoterm Langmuir dalam grafik linier dengan mengalurkan $1/C_e$ terhadap $1/q_e$ ditunjukkan pada persamaan:

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{Q_0 \cdot b \cdot C_e} + \frac{1}{Q_0}$$

dimana:

- q_e : jumlah Pb(II) teradsorpsi pergram adsorben (mg/g)
- C_0 : konsentrasi ion logam sebelum adsorpsi (mg/L)
- C_e : konsentrasi ion logam setelah adsorpsi (mg/L)
- V : volume larutan ion logam (L)
- w : jumlah adsorben zeolit X sintetis (g)
- K_f : kapasitas adsorpsi (mg/g)
- Q_0 : kapasitas adsorpsi monolayer (mg/g)
- b : konstanta isoterm Langmuir (L/mg)
- n : konstanta isoterm Freundlich

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil Karakterisasi Batu Padas

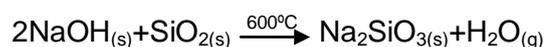
Karakterisasi dilakukan pada batu padas sebelum dan setelah preparasi (dicuci dan dikalsinasi). Persentase konsentrasi dari SiO_2 , dan Al_2O_3 pada batu padas mengalami peningkatan dari 65,512% menjadi 67,399% untuk SiO_2 , dan 24,165% menjadi 29,222% untuk Al_2O_3 setelah dilakukan preparasi dengan hilangnya kandungan logam di dalamnya, seperti As_2O_3 , BaO , dan Yb_2O_3 .

Hasil analisis XRD menunjukkan adanya puncak 2θ dengan intensitas berturut-turut $26,597^\circ$ (100%); $20,809^\circ$ (17%) dan $50,101^\circ$ (11%). Menurut JCPDS PDF No.01-075-8322 puncak pada sudut $2\theta = 26,597^\circ$; $20,809^\circ$; dan $50,101^\circ$ merupakan puncak untuk mineral kuarsa (SiO_2).

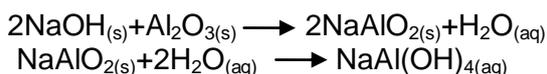
Hasil Sintesis dan Karakterisasi Zeolit X

Sintesis zeolit X dilakukan dengan menggunakan metode sol-gel yang meliputi beberapa tahapan diantaranya pembuatan prekursor awal dari reaksi alumina dan silika dengan NaOH menjadi larutan natrium silikat dan aluminat, dilanjutkan pengendapan (*aging*), kristalisasi (hidrotermal), pencucian zeolit, dan pengeringan (Bahri, 2015).

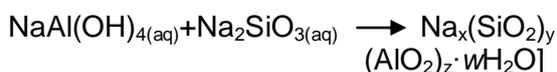
Langkah awal yang dilakukan adalah pembuatan natrium silikat. Natrium silikat dibuat dengan metode peleburan batu padas dan NaOH. Reaksi yang terjadi antara NaOH dan SiO_2 pada batu padas adalah sebagai berikut (Ojha dkk., 2004):



Selanjutnya dilakukan pembuatan natrium aluminat. Pembuatan natrium aluminat dapat dilakukan dengan melarutkan NaOH ke dalam akuades, kemudian ditambahkan Al₂O₃ sedikit demi sedikit dengan pemanasan disertai pengadukan. Pemanasan dan pengadukan dilakukan agar kristal Al₂O₃ dapat larut sempurna dalam NaOH membentuk larutan natrium aluminat. Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut (Ojha dkk., 2004):

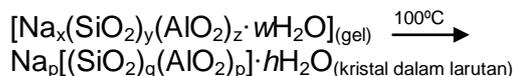


Larutan natrium silikat dan natrium aluminat selanjutnya dicampurkan dan diaduk sampai campuran homogen. Pada proses pencampuran, ion silikat dan ion aluminat menghasilkan sol, kemudian dilanjutkan dengan proses polikondensasi, pada tahapan ini terjadi transisi fasa sol menjadi gel. Terbentuknya gel adalah awal dari pembentukan inti dan pertumbuhan kristal yang merupakan hal penting dalam proses sintesis zeolit (Bahri, 2015). Gel yang terbentuk selanjutnya diendapkan (*aging*) untuk pembentukan inti kristal (Warsito dkk., 2008). Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut (Ojha dkk., 2004):



Setelah terbentuk gel dari hasil pengendapan (*aging*), kemudian

dilanjutkan dengan proses hidrotermal. Reaksi yang terjadi dalam proses hidrotermal yaitu (Ojha dkk., 2004):



Produk yang terbentuk dipisahkan dari larutannya dan dicuci dengan akuades hingga pH 9-10. Selanjutnya padatan dikeringkan dalam oven.

Karakterisasi zeolit hasil sintesis menggunakan XRD. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa zeolit sintetis yang dihasilkan merupakan zeolit X. Sudut 2θ dan d *spacing* beserta intensitas yang dilakukan pencocokan nilai sudut 2θ dan d *spacing* zeolit X sintetis dengan JCPDS zeolit X PDF No.00-038-0237 disajikan pada Tabel 1.

Hasil Penentuan Waktu Kontak terhadap Adsorpsi Pb(II) pada Zeolit X Sintetis

Konsentrasi Pb(II) yang teradsorpsi oleh zeolit X sintetis terus meningkat seiring bertambahnya waktu kontak. Adsorpsi terus meningkat dari waktu 30 menit sampai dengan 120 menit. Konsentrasi Pb(II) yang teradsorpsi pada waktu 120 menit sebesar 94,85 mg/L dengan efisiensi penyerapan 99,45%, setelah itu proses adsorpsi kemudian turun setelah waktu 150 menit. Hal ini dapat disebabkan karena Pb(II) yang teradsorpsi pada permukaan pori dan situs aktif zeolit X sintetis mengalami desorpsi.

Tabel 1. Nilai Sudut 2θ dan d *Spacing* Zeolit X Sintetis dan Zeolit X Standar

Zeolit X Sintetis			Zeolit X Standar		
2θ (°)	I(%)	d (Å)	2θ (°)	I(%)	d (Å)
11,742	38	7,530	11,727	12	7,540
15,419	62	5,741	15,451	18	5,730
18,402	19	4,817	18,430	5	4,810
20,060	41	4,422	20,072	9	4,420
23,296	94	3,815	23,340	21	3,808
26,652	96	3,341	26,683	18	3,338
29,204	25	3,055	29,247	4	3,051
30,311	43	2,946	30,335	9	2,944
30,939	100	2,887	30,971	19	2,885
31,979	41	2,796	32,006	8	2,794
33,595	40	2,665	33,626	8	2,663
37,348	24	2,405	37,376	5	2,404
57,423	25	1,603	57,439	3	1,603

Hasil Penentuan Massa Zeolit X Sintetis terhadap Adsorpsi Pb(II)

Hasil pengukuran pengaruh massa zeolit X sintetis terhadap adsorpsi Pb(II) membuktikan efisiensi adsorpsi Pb(II) terus meningkat dengan bertambahnya massa zeolit X sintetis yang digunakan. Pada massa zeolit X sintetis 0,125 gram, konsentrasi Pb(II) yang teradsorpsi sebesar 77,31 mg/L dengan efisiensi penyerapan 69,65%. Konsentrasi Pb(II) yang teradsorpsi terus meningkat sampai dengan penggunaan massa zeolit X sintetis 1,75 gram sebesar 108,45 mg/L dengan efisiensi penyerapan 97,41%. Berdasarkan hasil uji ANOVA menunjukkan Pb(II) yang teradsorpsi pada massa zeolit X sintetis 1,5 gram dan 1,75 gram tidak berbeda signifikan, sehingga massa zeolit X sintetis terbaik dalam adsorpsi Pb(II) terjadi pada variasi massa zeolit X sintetis 1,5 gram. Hal ini menunjukkan bahwa proses adsorpsi menuju fase kesetimbangan, karena semua situs aktif zeolit X sintetis sudah jenuh untuk berinteraksi dengan Pb(II).

Isoterm Adsorpsi Pb(II) pada Zeolit X Sintetis

Konsentrasi Pb(II) teradsorpsi terus meningkat dari konsentrasi awal Pb(II) 53–336 mg/L dan berdasarkan hasil uji ANOVA menunjukkan perbedaan signifikan Pb(II) yang teradsorpsi pada variasi konsentrasi awal Pb(II). Semakin tinggi konsentrasi adsorbat maka semakin tinggi pula adsorbat yang terserap. Peningkatan jumlah konsentrasi Pb(II) teradsorpsi menunjukkan bahwa permukaan pori maupun situs aktif pada zeolit X sintetis masih belum jenuh sehingga ketika konsentrasi Pb(II) yang ditambahkan akan meningkatkan jumlah Pb(II) yang teradsorpsi. Hal ini disebabkan oleh tingginya kemampuan adsorpsi oleh situs aktif zeolit X sintetis terhadap Pb(II).

Nilai linearitas yang diperoleh dari masing-masing grafik isoterm menunjukkan kesesuaian model isoterm adsorpsi dalam menggambarkan proses adsorpsi yang terjadi berdasarkan asumsi isoterm adsorpsi Freundlich dan isoterm adsorpsi Langmuir. Nilai linearitas yang mendekati 1 maka semakin sesuai model isoterm adsorpsi tersebut dalam menggambarkan proses adsorpsi adsorbat oleh adsorben.

Hasil linearitas isoterm adsorpsi Langmuir(R^2)=0,991 lebih besar dibandingkan nilai linearitas adsorpsi Freundlich(R^2)=0,964 dan artinya isoterm adsorpsi Langmuir lebih cocok untuk menjelaskan proses adsorpsi ion Pb(II) oleh zeolit X sintetis. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi ion Pb(II) pada adsorben zeolit X sintetis terjadi pada lapisan monolayer dengan tingkat energi yang homogen.

SIMPULAN

Adsorpsi dari zeolit X sintetis terhadap Pb(II) berlangsung pada waktu kontak optimum 120 menit dengan persen efektivitas penurunan konsentrasi Pb(II) sebesar 99,45% dari konsentrasi awal Pb(II) 95,38 mg/L, dan massa optimum zeolit X sintetis yang diperlukan sebanyak 1,5 gram dengan persen efektivitas penurunan konsentrasi Pb(II) sebesar 97,49% dari konsentrasi awal Pb(II) 111 mg/L. Adsorpsi dari zeolit X sintetis terhadap Pb(II) mengikuti model isoterm adsorpsi Langmuir dengan kapasitas adsorpsi sebesar 7,633 mg/g.

DAFTAR PUSTAKA

- Aditama S.N., 2015, Sintesis dan Karakterisasi Zeolit X dari Abu Vulkanik Gunung Kelud dengan Variasi Suhu Hidrotermal menggunakan Metode Sol-gel, Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim, Malang. (Skripsi)
- Bahri S., 2015, Sintesis dan Karakteristik Zeolit X dari Abu Vulkanik Gunung Kelud dengan Variasi Rasio Molar Si/Al menggunakan Metode Sol-gel, Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim, Malang. (Skripsi).
- Fitriyana D.F., dan Sulardjaka, 2012, Sintesis Zeolit A Berbahan Dasar Limbah Geotermal dengan Metode Hidrotermal, Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro, Semarang.
- Kabwadza-Corner P., Johan E., and Matsue N., 2015 pH Dependence of Lead Adsorption on Zeolites,

- Laboratory of Applied Chemistry for Environmental Industry. Faculty of Agriculture, Ehime University Matsuyama, Japan.
- Kurniawati D., 2010, Sintesis Zeolit dari Abu Layang Batubara Secara Hidrotermal Melalui Proses Peleburan dan Aplikasinya untuk Penurunan Logam Cr (Krom) dalam Limbah Industri Penyamakan Kulit, Jurusan Kimia, FMIPA, Universitas Negeri Semarang, Semarang. (Skripsi).
- Ojha K., Narayan C.P., and Amar N.T., 2004, Zeolite from Fly Ash Synthesis and Characterization, *Journal Sci.*, 27(6): 555-564.
- Peraturan Menteri Kesehatan Republik Indonesia, 2010. *Peraturan Menteri Kesehatan Republik Indonesia No. 492 tentang Persyaratan Kualitas Air Minum.*
- Shaila K., Patil P.V., Deepa P., and Shridhar S., 2015, *Zeolite as Adsorbent for the Removal of Nickel*, LIT, RTM Nagpur University, Nagpur, MH, India.
- Trivana L., 2013, Sintesis Zeolit X dan Nanokomposit Zeolit/TiO₂ dari Kaolin dengan Sekam Padi sebagai Sumber Silikia, Departemen Kimia, Fakultas MIPA, Institut Pertanian Bogor, Bogor. (Skripsi).
- Warsito S., Sriatun, dan Taslimah, 2008, Pengaruh Penambahan Surfaktan *Cetyltrimethylammonium Bromide* (n-CTMABr) pada Sintesis Zeolit-Y, Jurusan Kimia, Universitas Diponegoro, Semarang.
- Widayat, Sadikky A., dan Anggraeni H., 2012, Proses Produksi Katalis Zeolit X dan Uji Aktifitas dalam Proses Penukaran Ion Kalsium. *Jurnal Teknik*, 33(1).
- Yani A., Destiarti L., dan Wahyuni N., 2013, Sintesis Zeolit A dengan Variasi Sumber Silika dan Alumina, FMIPA Kimia, Universitas Tanjungpura, Pontianak. *Jurnal Kimia Khatulistiwa*, 2(1):1-6.