

BAB 4 PEMBAHASAN

4.1 pembuatan silika dari abu sekam padi

Proses pembuatan silika gel dari senyawa natrium silika secara umum tersusun dari empat tahap yaitu preparasi, refluks, pengasaman dan pengeringan silika gel hingga terbentuk asam silika

Sekam padi diperoleh dari pabrik penggilingan padi di daerah Pandeglang, Banten. Sekam padi yang telah dikumpulkan dari pengilingan harus melakukan treatment awal yaitu dibersihkan terlebih menggunakan air bersih, setelah itu dilakukan pengeringan sekam padi untuk menghilangkan pengotor. Kemudian dilakukan pembakaran lagi menggunakan furnace dengan suhu awal 300°C selama 1 jam bertujuan mempertahankan kandungan karbon dalam bentuk padat. Sekam padi, yang merupakan limbah pertanian kaya akan silika dan karbon, sangat potensial untuk dikarbonisasi hingga terjadi perubahan warna pada sekam padi menjadi ke abu-abuan. Pada proses karbonisasi sekam padi merupakan bentuk pirolisis termal yang berlangsung dalam kondisi terbatas oksigen, di mana bahan organik mengalami dekomposisi secara bertahap sesuai dengan kenaikan suhu pemanasan. Pada tahap awal, yaitu suhu 25–150°C, terjadi proses penguapan air (drying) tanpa adanya perubahan kimiawi pada struktur sekam (Bridgwater, 2012). Memasuki suhu 150–280°C, hemiselulosa sebagai salah satu komponen utama penyusun dinding sel tanaman mulai terdegradasi, menghasilkan gas ringan seperti karbon dioksida serta senyawa asam organik (Mohan et al., 2006). Tahapan karbonisasi aktif dimulai pada suhu 280–400°C, di mana selulosa mengalami pirolisis, menghasilkan biochar, gas volatil seperti CO, CH₄, H₂, serta tar (Demirbaş, 2004).

Setelah terjadinya karbonisasi, dilakukan kalsinasi dengan menggunakan furnace dengan variasi suhu 500 °C hingga 800°C. Pada rentang suhu 300–500°C, karbon organik hasil dekomposisi sebelumnya mulai terbakar sempurna menjadi gas CO₂, sehingga massa residu yang tersisa menjadi semakin dominan oleh komponen anorganik, terutama silika (SiO₂). Proses pembentukan abu sekam padi (rice husk ash) secara signifikan terjadi pada suhu 500–700°C, di mana hampir seluruh material organik

telah terbakar habis, dan yang tersisa adalah abu putih atau keabu-abuan dengan kandungan silika amorf yang tinggi. Silika amorf ini memiliki luas permukaan dan reaktivitas kimia yang tinggi, sehingga sangat potensial digunakan dalam aplikasi bahan bangunan, adsorben, atau katalis. Pada suhu sekitar 600°C, proses kalsinasi sekam padi telah mencapai tahap di mana hampir seluruh kandungan organik (seperti selulosa, hemiselulosa, dan lignin) telah terdegradasi dan terbakar sempurna. Yang tersisa pada suhu ini adalah abu sekam padi (rice husk ash) yang didominasi oleh silika amorf (amorphous silica), yaitu bentuk silika yang tidak memiliki keteraturan kristal. Silika amorf terbentuk akibat pelepasan komponen karbon dan volatil pada temperatur tinggi namun belum mencapai energi aktivasi yang cukup untuk reorganisasi struktur kristalnya. Abu yang dihasilkan pada suhu ini biasanya berwarna abu-abu terang atau putih pucat dan memiliki luas permukaan spesifik yang tinggi, menjadikannya sangat cocok untuk aplikasi sebagai bahan tambahan semen (pozzolan), adsorben, atau katalis heterogen (Kalapathy et al., 2000; Della et al., 2002).

Memasuki suhu 700°C, struktur silika mulai mengalami perubahan secara mikrostruktur. Walaupun sebagian besar silika masih berada dalam bentuk amorf, nukleasi kristal mulai terjadi. Proses ini ditandai dengan munculnya titik-titik awal pembentukan kristal silika dalam abu, seperti cristobalite dalam jumlah sangat kecil. Kondisi ini sangat dipengaruhi oleh durasi pemanasan; jika suhu 700°C hanya dipertahankan dalam waktu singkat (misalnya <1 jam), silika masih dominan amorf. Namun, jika dipertahankan lebih lama, kristalisasi akan meningkat. Oleh karena itu, pada suhu ini, perlu pengendalian waktu penahanan secara cermat untuk menghindari penurunan kualitas silika amorf, terutama jika abu ditujukan untuk aplikasi yang membutuhkan reaktivitas kimia tinggi (Mansaray & Ghaly, 1998).

Pada suhu 800°C, transformasi fasa dari silika amorf ke silika kristalin menjadi semakin dominan. Silika mengalami reorganisasi struktural, membentuk fasa kristalin yang lebih stabil secara termodinamik seperti tridymite dan cristobalite, tergantung kondisi lingkungan (waktu, tekanan parsial oksigen, dan komposisi abu). Proses ini menurunkan luas permukaan spesifik dan mengurangi kemampuan reaktif silika dalam interaksi kimia, seperti dalam reaksi pozzolanik dengan kalsium hidroksida pada beton.

Selain itu, silika kristalin seperti cristobalite bersifat lebih inert dan kurang efisien sebagai bahan adsorben atau filler. Oleh karena itu, meskipun kalsinasi pada 800°C mampu menghilangkan hampir seluruh pengotor organik, suhu ini tidak direkomendasikan jika tujuan utama adalah memperoleh silika amorf berkualitas tinggi (Della et al., 2002; Xu & Lo, 2004).

Setelah proses kalsinasi dilakukan, proses *leaching* menggunakan NaOH sebanyak 1M pada suhu 70 °C. Penggunaan NaOH digunakan sebagai pelarut karena sifat silika yang hanya larut dalam basa seperti alkali hidroksida dan leburan-leburan karbonat (Ginanjari, dkk. 2014). Hasil yang terbentuk dalam proses ekstraksi adalah larutan natrium silikat.

Setelahnya melakukan penyaringan antara larutan silikat dengan sisa abu sekam, hasil dari larutan silikat kemudian dititrasi menggunakan HCl 1 M. Proses pengasaman bertujuan untuk membentuk natrium silikat dalam bentuk gel karena atom oksigen natrium silikat menyerang atom silicon pada natrium silikat bebas. Gel yang dihasilkan masih related lunak hingga pH netral (pH=7) pH netral digunakan untuk mendapatkan kondisi endapan silika dengan hasil yang optimal. Setelahnya hasil dari gel tersebut didiamkan hingga gel yang lunak menjadi lebih padat (*aged*). Endapan hasil silika tersebut kemudian di saring kembali untuk diambil endapan gelnya, lalu dicuci menggunakan aquades untuk menghilangkan sisa-sisa senyawa didalamnya. Setelahnya dikeringkan menggunakan oven pada suhu 100 °C selama 8 jam untuk menghasilkan silika padat yang akan digunakan dalam proses sintesis pembuatan mordenit.

4.2 Sintesis zeolit mordenit

Proses sintesis zeolite mordenit diawali dengan menyiapkan bahan baku proses sintesis. Jumlah setiap bahan baku ditentukan dari rasio komposisi sintesis yang digunakan yakni 1 Al₂O₃ : 30 SiO₂ : 14 NaOH: 720 H₂O dan kandungan SiO₂ yang diperoleh dari analisa XRF. Jumlah bahan baku yang digunakan adalah 0.5 gram Al₂O₃, 8.8 gram SiO₂, 2.74 gram NaOH padat teknis, dan 68.9 gram *aquades*. Bahan baku ini kemudian diaduk pada *magnetic stirrer* pada suhu ruang secara berurutan dimulai dengan pengadukan NaOH padat dalam aquades selama 5 menit, kemudian dilanjutkan dengan pengadukan larutan sebelumnya dengan SiO₂ selama 30 menit, dan yang

terakhir pengadukan larutan dengan Al_2O_3 selama 10 menit.

Larutan hidrotermal yang sudah disiapkan kemudian dimasukkan ke dalam *autoclave* berbahan polytetrafluoroethylene (PTFE) dengan dimensi 93x49 mm dan ditutup dengan tabung berbahan *stainless steel* 3304. Proses hidrotermal kemudian dapat dilakukan selama 24 jam. Hasil yang diperoleh dari tahapan hidrotermal adalah slurry yang kemudian dicuci dengan aquades sampai pH nya netral. Sampel kemudian dapat dikeringkan di oven selama 12 jam dengan suhu 110°C dan dilakukan uji untuk menentukan hasil yang diperoleh.

4.3. Hasil analisa X-ray fluorescence (XRF) pada silika

Penentuan kadar unsur dalam abu teridentifikasi menggunakan X-ray Fluorescence (XRF). Prinsip yang digunakan dalam penentuan unsur atau elemen berdasarkan interaksi sinar X dengan bahan atau sampel. Kadar abu silika berdasarkan pengujian menggunakan XRF dapat dilihat pada tabel dibawah ini ;

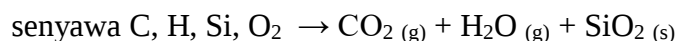
Tabel 4.1 Kandungan XRF masing-masing silika

Komponen	Suhu ($^\circ\text{C}$)			
	500°	600°	700°	800°
	Massa (%-b)			
SiO_2	54.5	56.3	68.9	61.8
K	0.00657	0.557	0.5576	0.507
Ca	0.0008	0.07	0.05	0.06
Cr	0.0018	0.0019	0.0019	0.001
Mn	0.016	0.019	0.016	0.016
Fe	0.0204	0.0203	0.0204	0.0201
Ni	0.00112	0.0011	0.0011	0.0010
Cu	0.0019	0.0018	0.0018	0.0018
Zn	0.0048	0.0018	0.0038	0.0028

Al	2.26	3.12	4.3	2.7
Cl	42.3	36.78	23.3	31.5
Lainnya.	0.904	3.7109	2,8677	3,3903

Dari tabel di atas, kita dapat melihat bahwa sebagian besar senyawa seperti Na, Zr dan Ar dalam sampel tidak terdeteksi. Hal ini dipengaruhi oleh proses pencucian air suling yang dimaksudkan untuk menghilangkan pengotor yang terbentuk selama proses pengolahan (Izzati, dkk., 2013). Hasil silika dari abu sekam padi Pandeglang pada konsentrasi NaOH 1 M menunjukkan kandungan SiO₂ sebesar 68,9% pada pembakaran 700°C.

Pembakaran yaitu reaksi kimia bahan bakar dengan oksigen (O). Proses pembakaran sekam padi menjadi abu sekam padi, senyawa-senyawa seperti selulosa dan lainnya akan berubah menjadi CO₂ dan H₂O, dan tersisa abu yang merupakan komponen anorganik. Berikut merupakan reaksi yang terjadi pada saat proses pembakaran sekam padi menjadi abu sekam padi (RHA) yaitu:



Pembakaran sekam pada temperatur 500 °C masih mengandung karbon yang belum teroksidasi sempurna sehingga kadar silika dalam abu masih relatif rendah. Sedangkan, pengabuan pada suhu diatas 800°C akan menghasilkan abu dengan karakteristik kristal yang tinggi serta membutuhkan lebih banyak energi pembakaran sehingga mempengaruhi kandungan SiO₂ pada proses pembuatan silika. Nilai “others ” pada tabel merupakan material yang tidak terbaca oleh instrumen XRF, kemungkinan mengandung bahan pengotor seperti abu, karbon sisa, atau debu. Sebagian besar kandungan abu sekam padi hasil pembakaran mengandung silika, sedikit logam oksida, dan karbon residu yang diperoleh dari pembakaran. Pada suhu sekitar 600°C, proses kalsinasi sekam padi telah mencapai tahap di mana hampir seluruh kandungan organik (seperti selulosa, hemiselulosa, dan lignin) telah terdegradasi dan terbakar sempurna. Yang tersisa pada suhu ini adalah abu sekam padi (rice husk ash) yang didominasi oleh silika amorf (amorphous silica), yaitu bentuk silika yang tidak memiliki keteraturan kristal. Silika amorf terbentuk akibat pelepasan komponen karbon dan volatil pada

temperatur tinggi namun belum mencapai energi aktivasi yang cukup untuk reorganisasi struktur kristalnya. Abu yang dihasilkan pada suhu ini biasanya berwarna abu-abu terang atau putih pucat dan memiliki luas permukaan spesifik yang tinggi, menjadikannya sangat cocok untuk aplikasi sebagai bahan tambahan semen (pozzolan), adsorben, atau katalis heterogen (Kalapathy et al., 2000; Della et al., 2002).

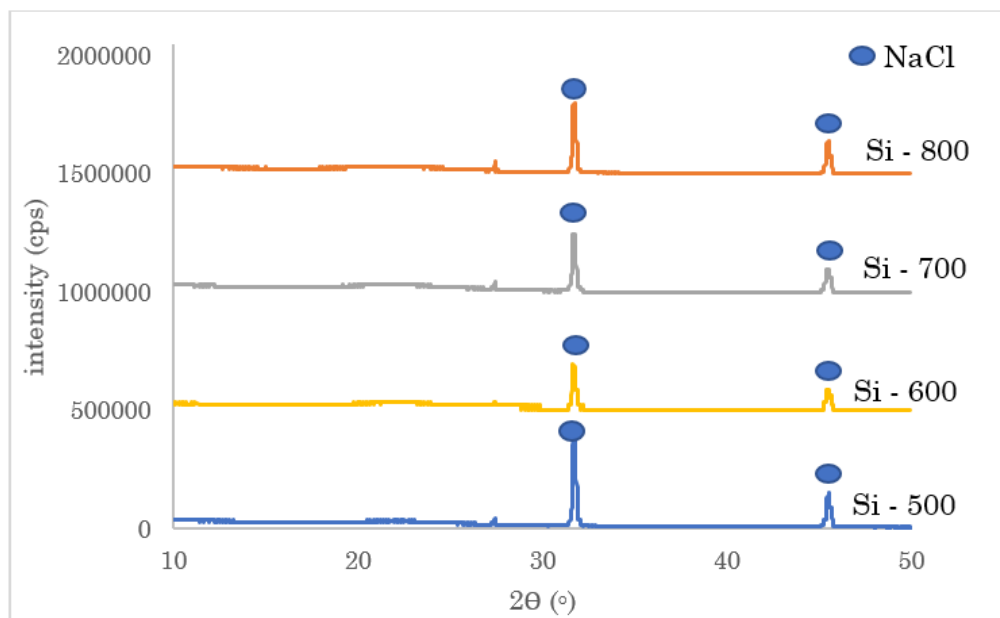
Memasuki suhu 700°C, struktur silika mulai mengalami perubahan secara mikrostruktur. Walaupun sebagian besar silika masih berada dalam bentuk amorf, nukleasi kristal mulai terjadi. Proses ini ditandai dengan munculnya titik-titik awal pembentukan kristal silika dalam abu, seperti cristobalite dalam jumlah sangat kecil. Kondisi ini sangat dipengaruhi oleh durasi pemanasan; jika suhu 700°C hanya dipertahankan dalam waktu singkat (misalnya kurang dari 1 jam), silika masih dominan amorf. Namun, jika dipertahankan lebih lama, kristalisasi akan meningkat. Oleh karena itu, pada suhu ini, perlu pengendalian waktu penahanan secara cermat untuk menghindari penurunan kualitas silika amorf, terutama jika abu ditujukan untuk aplikasi yang membutuhkan reaktivitas kimia tinggi (Mansaray & Ghaly, 1998).

Pada suhu 800°C, transformasi fasa dari silika amorf ke silika kristalin menjadi semakin dominan. Silika mengalami reorganisasi struktural, membentuk fasa kristalin yang lebih stabil secara termodinamik seperti tridymite dan cristobalite, tergantung kondisi lingkungan (waktu, tekanan parsial oksigen, dan komposisi abu). Proses ini menurunkan luas permukaan spesifik dan mengurangi kemampuan reaktif silika dalam interaksi kimia, seperti dalam reaksi pozzolanik dengan kalsium hidroksida pada beton. Selain itu, silika kristalin seperti cristobalite bersifat lebih inert dan kurang efisien sebagai bahan adsorben atau filler. Oleh karena itu, meskipun kalsinasi pada 800°C mampu menghilangkan hampir seluruh pengotor organik, suhu ini tidak direkomendasikan karena tujuan utama adalah memperoleh silika amorf berkualitas tinggi.

Pengasaman menggunakan HCl juga menurunkan kandungan unsur selain silikon, seperti kalium (K), kalsium (Ca), mangan (Mn), besi (Fe), tembaga (Cu) dan seng (Zn). Hal ini menunjukkan bahwa kemurnian silika dapat ditingkatkan dengan perlakuan asam awal sekam padi sebelum proses termal. Senyawa yang mengandung

kalium merupakan salah satu kontaminan utama dalam sekam padi, dan keberadaannya sangat menghambat pemisahan silika murni dari sekam padi (Sapei, 2008). Penghapusan logam alkali seperti K dan Ca dapat dicapai dengan proses garam melalui interaksi senyawa yang mengandung logam ini dengan asam sitrat. Penurunan kandungan logam transisi seperti Mn dan Fe erat kaitannya dengan pembentukan senyawa kompleks (ion kompleks). (Sapei, 2015). pada pembakaran suhu 500°C hingga 700°C maka jumlah silika yang dihasilkan juga semakin tinggi, namun pada suhu 800°C yield menjadi berkurang Hal ini dikarenakan semakin meningkatnya suhu akan menghancurkan struktur suatu materi yang ada dalam abu sekam padi tersebut.

4.4 Hasil analisa X-Ray Diffraction (XRD) pada Silika

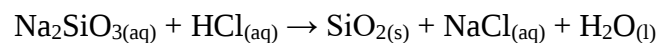


Gambar 4.1 data XRD dari silika variasi (a) 500°C; (b) 600°C ;(c) 700°C dan (d) 800°C

Grafik landai tersebut menunjukkan bahwa silika yang diperoleh bersifat amorf. Menurut hasil penelitian dari Donanta, dkk. 2020 menjelaskan bahwa tak satupun dari pola XRD dari sampel mana pun yang menunjukkan puncak spesifik atau puncak tajam. Silika yang diperoleh dengan ekstraksi alkali benar-benar amorf. Hal ini karena natrium hidroksida hanya melarutkan silika amorf, yang selanjutnya diendapkan. Struktur silika yang disintesis dari limbah sekam padi tergantung pada suhu pembakaran sekam padi

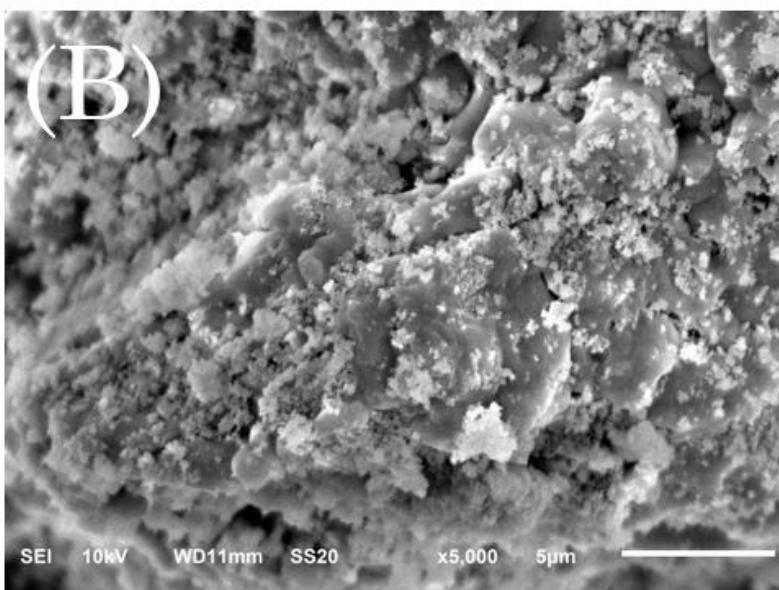
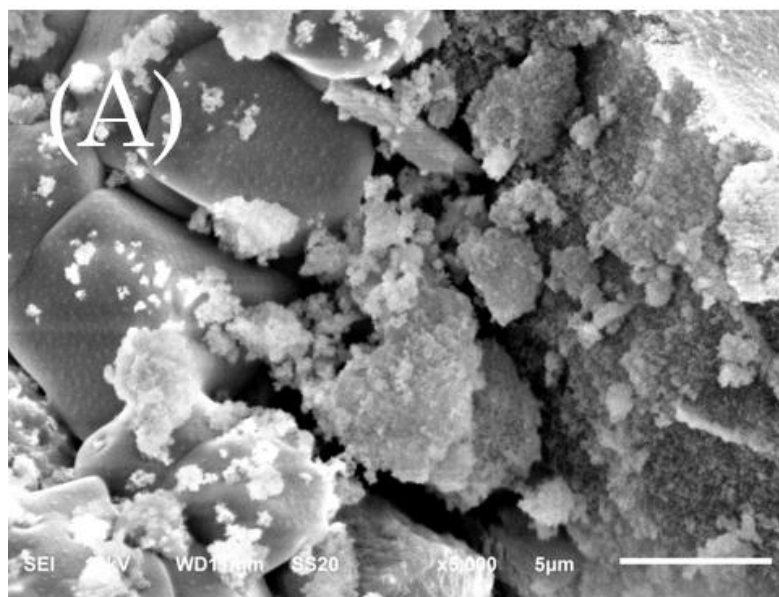
untuk menghasilkan Rice Husk Ash (RHA). (Mukherjee dan Roy, 1991). Berdasarkan hasil uji XRD Gambar 4.1, abu silika yang diperoleh dari pembakaran di dalam furnace, didapatkan dengan melakukan perlakuan awal sehingga dihasilkan silika yang bersifat amorf. Hal ini ditunjukkan dari puncak yang landai pada kisaran $2(\theta) = 22^\circ$ yang merupakan karakteristik silika amorf. Hal ini bersesuaian dengan penelitian sebelumnya bahwa silika mendapatkan perlakuan awal dari sekam padi memiliki struktur amorf (Sapei, 2012; Umeda, 2008). Silika yang berasal dari abu sekam padi dapat berbentuk kristal atau amorf tergantung pada suhu pembakaran. Jika suhu di bawah 700°C , silika amorf dengan luas permukaan tinggi dapat diproduksi dan jika suhu di atas 800°C , produk akan berbentuk kristal. (Prasara-A dan Gheewala, 2016).

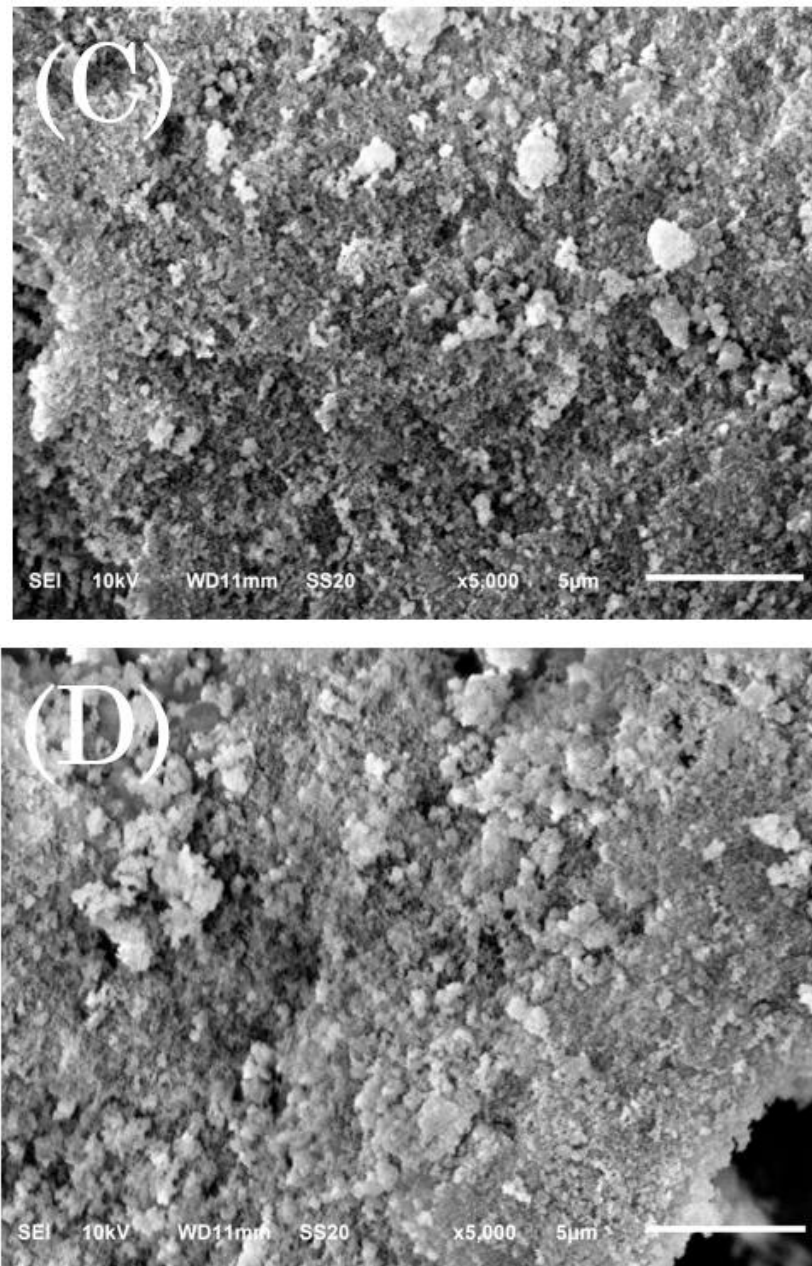
Selain itu dalam analisis, terdapat pengotor Na dan Cl pada silika menunjukkan terdapatnya garam NaCl yang masih terkandung dalam silika xerogel. Garam NaCl merupakan garam yang terbentuk akibat adanya reaksi antara Na_2SiO_3 dengan HCl pada proses pengasaman. Berdasarkan literatur pengotor ini merupakan pengotor yang pasti ada dalam abu sekam padi, dan untuk menghilangkannya diperlukan proses pencucian asam. Berdasarkan persamaan reaksi yang ditunjukkan pada persamaan di bawah



4.5. Hasil analisa SEM pada Silika

Pada gambar 4.2 menyajikan hasil analisis SEM silika dengan variasi suhu pembakaran kalsinasi. Pada gambar tersebut menunjukkan bahwa permukaan sampel silika yang dihasilkan memiliki struktur amorf dan terdistribusi lebih merata pada gambar (c) dan (d) dibandingkan dengan variasi kalsinasi pada gambar (a) dan (b) dimana terbentuk gumpalan (cluster) yang tidak merata. Permukaan berwarna cerah menunjukkan silika amorf, sedangkan permukaan berwarna gelap menunjukkan rongga pori. kalsinasi berlangsung dengan suhu semakin tinggi menyebabkan heterogenitas penyusutan dan distribusi cairan pori, tekstur yang dihasilkan menunjukkan heterogenitas yang relatif besar,



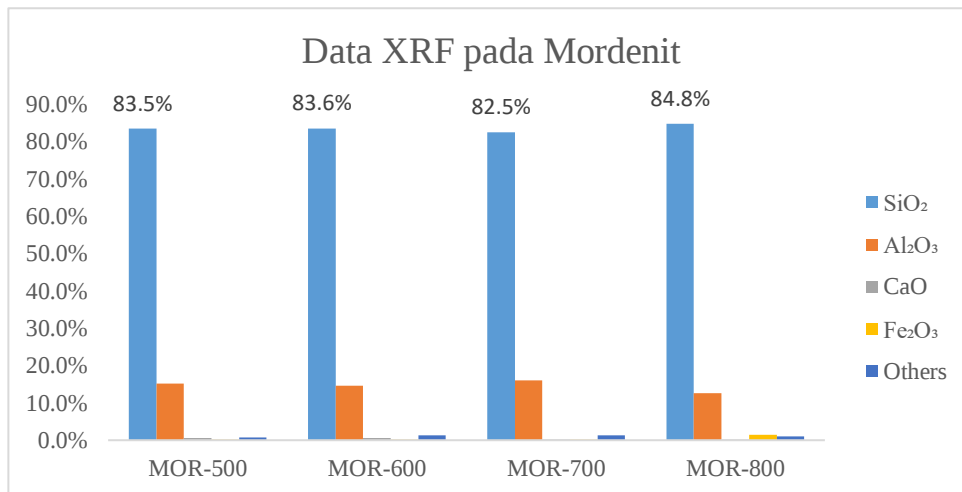


Gambar 4.2 analisis SEM Silika dengan variasi kalsinasi dari (a) 500 °C (b) 600 °C (c) 700 °C dan (d) 800 °C

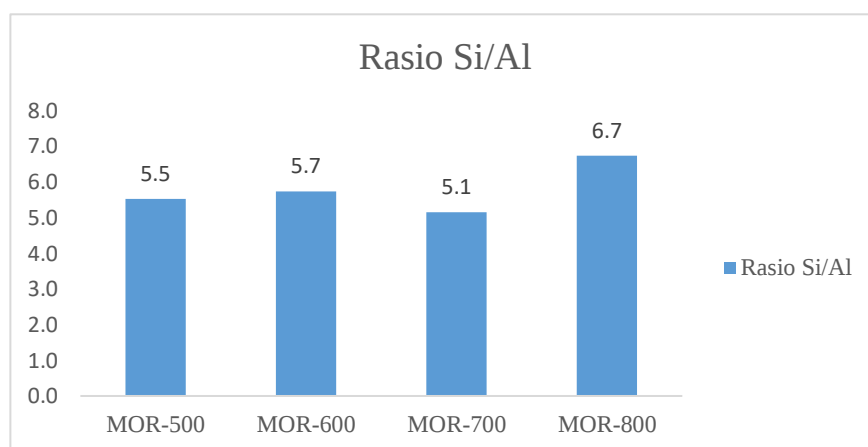
4.6 Hasil analisa XRD dan XRF pada mordenit

Karakterisasi Silika sebelum digunakan sebagai material sintesis mordenit perlu dilakukan untuk memperoleh data referensi yang nantinya dapat digunakan sebagai pembandingan dengan data sampel yang diperoleh. Karakterisasi silika juga digunakan

untuk mengetahui kandungan Si dan Al yang dimiliki sehingga rasio bahan baku larutan hidrotermal dapat dibuat dengan lebih akurat. Hasil karakterisasi mordenit dengan analisa XRF dan XRD dapat dilihat pada tabel dan grafik berikut.



Gambar 4.3 gambar kandungan XRF Pada mordenit



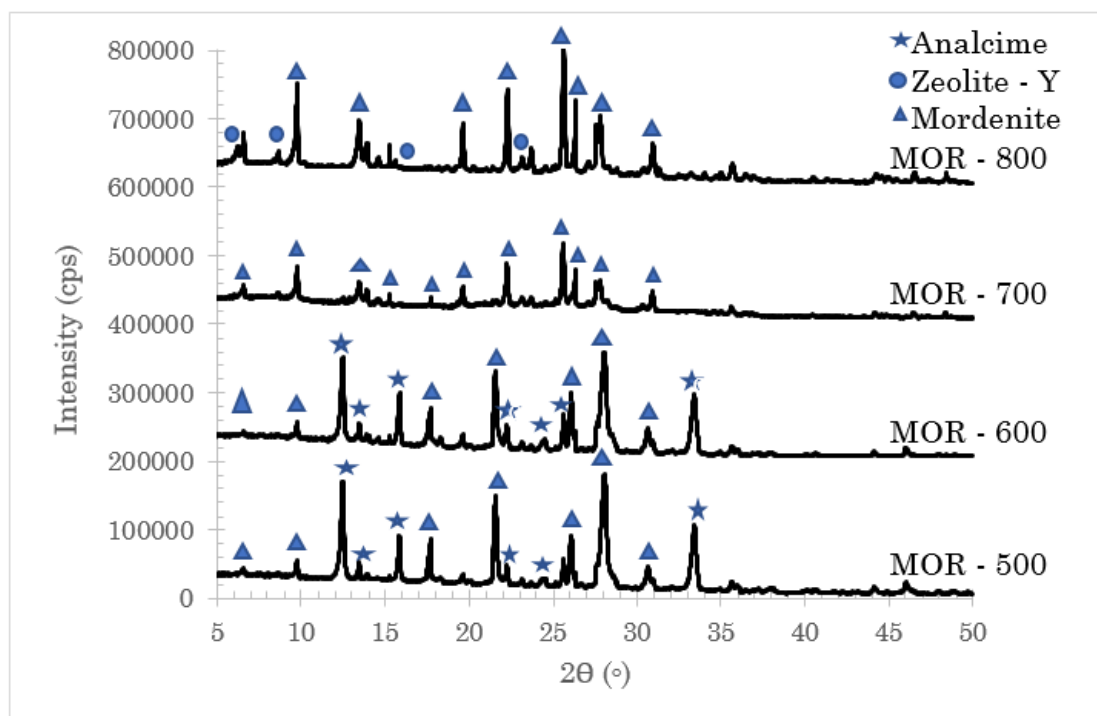
Gambar 4.4 rasio Si/Al pada mordenit

Rasio Si/Al (silikon terhadap aluminium) pada mordenit merupakan parameter krusial yang menentukan sifat fisikokimia zeolit tersebut, sehingga sangat berpengaruh terhadap aplikasinya dalam berbagai bidang, terutama sebagai katalis dan adsorben. Mordenit, sebagai salah satu jenis zeolit berkerangka kristalin tiga dimensi, tersusun dari unit tetrahedral SiO₄ dan AlO₄ yang saling terhubung membentuk sistem pori. Perbandingan jumlah atom Si dan Al dalam kerangka tersebut memengaruhi kepadatan muatan negatif yang ditimbulkan oleh keberadaan Al, dan karenanya menentukan

jumlah situs asam Brønsted setelah dinetralkan oleh kation seperti H^+ . Rasio Si/Al yang rendah menunjukkan kandungan aluminium yang tinggi, sehingga menghasilkan lebih banyak situs asam dan sifat hidrofilik yang kuat, menjadikan mordenit efektif untuk proses yang membutuhkan kapasitas adsorpsi air tinggi dan aktivitas katalitik yang intensif. Sebaliknya, rasio Si/Al yang tinggi menandakan dominasi silikon, yang berimplikasi pada meningkatnya sifat hidrofobik, kestabilan termal, serta ketahanan terhadap lingkungan asam, sehingga cocok digunakan untuk reaksi pada kondisi ekstrem atau dalam pemisahan molekul non-polar. Melalui teknik modifikasi seperti dealuminasi atau sintesis terkontrol, rasio Si/Al pada mordenit dapat disesuaikan untuk mengoptimalkan performa sesuai kebutuhan aplikasi spesifik. Sebagai contoh, bahwa perlakuan asam-basa menggunakan asam asetat dan NaOH dapat meningkatkan rasio Si/Al serta luas permukaan mordenit, yang berkontribusi pada peningkatan aktivitas katalitik dalam proses hidrotreatment bio-oil (Yusniyanti et al. 2020). Dengan demikian, pemahaman dan pengaturan rasio Si/Al menjadi aspek fundamental dalam rekayasa dan penerapan mordenit sebagai material fungsional yang efisien.

Pada gambar 4.3, dapat diketahui bahwa kandungan silika pada proses hidrotermal memiliki pengaruh pada komposisi sampel yang terdeteksi pada mordenit. Sampel variasi suhu 700 °C memiliki komposisi SiO_2 dan rasio Si/Al paling rendah dikarenakan sampel sedang berada pada fasa transisi pembentukan mordenit. Semakin lama proses hidrotermal berlangsung, maka SiO_2 amorf yang bereaksi dengan Al_2O_3 akan semakin banyak dan membentuk fasa zeolit mordenit. Fase pengotor kuarsa juga mempengaruhi kandungan Si/Al serta diketahui akan semakin meningkat apabila proses hidrotermal terjadi terlalu lama. Mordenit yang disintesis dari sekam padi dengan rasio Si/Al sebesar 5 hingga 6 tergolong sebagai zeolit yang bersifat asam dan hidrofilik. Rasio Si/Al yang rendah menandakan kandungan aluminium yang relatif tinggi dalam kerangka zeolit, yang menghasilkan banyak muatan negatif. Muatan ini kemudian dinetralkan oleh kation, terutama ion hidrogen (H^+) jika mordenit berada dalam bentuk asam (H-mordenit), membentuk situs asam Brønsted yang aktif. Kehadiran situs-situs ini memberikan karakter keasaman yang kuat pada mordenit, menjadikannya sangat cocok untuk aplikasi katalitik, seperti cracking hidrokarbon dan reaksi konversi biomassa. Selain itu, tingginya jumlah Al juga membuat mordenit bersifat hidrofilik, sehingga

mampu menyerap molekul polar seperti air dengan baik. Oleh karena itu, mordenit dengan rasio Si/Al dalam kisaran 5 diklasifikasikan sebagai mordenit asam, dengan aktivitas katalitik yang tinggi dan kemampuan adsorpsi yang baik, meskipun kestabilan termalnya tidak setinggi mordenit dengan rasio Si/Al yang lebih besar. Namun, dibandingkan rasio Si/Al 5, jumlah situs asam sedikit berkurang karena proporsi aluminium yang lebih rendah. Hal ini bisa menghasilkan keasaman yang lebih seimbang dan terkontrol, serta mengurangi kemungkinan deaktivasi katalis akibat koking atau adsorpsi air berlebih. Mordenit dengan rasio Si/Al 6–7 juga menunjukkan sifat yang sedikit lebih hidrofobik dibandingkan yang sangat rendah Si/Al-nya, sehingga dapat bekerja lebih baik dalam reaksi yang melibatkan molekul organik non-polar atau dalam kondisi dengan kadar uap air tinggi. Oleh karena itu, mordenit dalam kisaran rasio ini tetap bersifat asam, namun dengan karakter yang lebih stabil secara termal dan kimia, menjadikannya sangat potensial untuk aplikasi katalitik jangka panjang yang memerlukan efisiensi tinggi dengan keasaman sedang.



Gambar 4.5 grafik XRD masing-masing mordenite

Pada gambar 4.5, diketahui bahwa semua sampel sudah memiliki puncak untuk

fasa kristal mordenit. Mordenit sendiri memiliki karakteristik puncak kristalinitas pada sudut 2θ 6.51° , 9.77° , 13.45° , dan 25.63° (Treacy & Higgins, 2007). Fasa pengotor yang terbentuk adalah fasa kuarsa yang terletak pada sudut 2θ 26.62° (Treacy & Higgins, 2007).

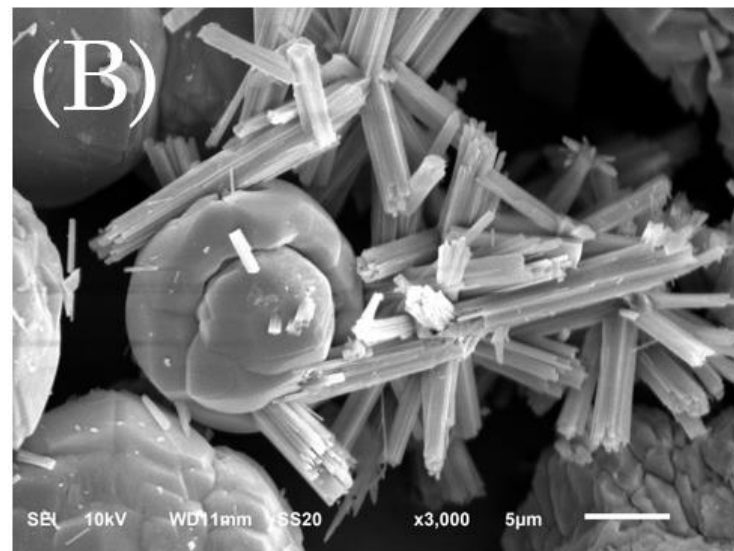
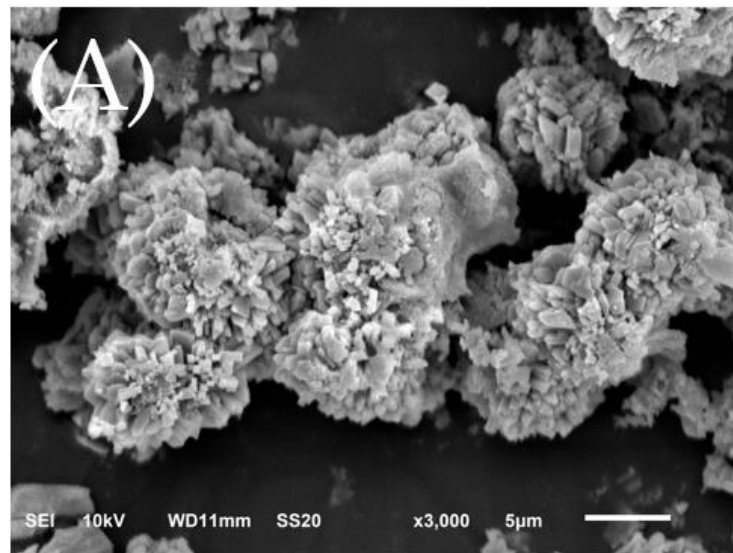
Pada percobaan rasio silika dalam proses hidrotermal, penelitian dilakukan dengan mensintesis zeolit mordenit ($\text{Na}_8(\text{H}_2\text{O})_{24}[\text{Si}_{40}\text{Al}_8\text{O}_{96}]$) (Treacy & Higgins, 2007) dengan variasi rasio $1\text{Al}_2\text{O}_3 : 30 \text{SiO}_2 : 14 \text{NaOH} : 720 \text{H}_2\text{O}$. Berdasarkan hasil XRD yang diperoleh, diketahui ketiga sampel memiliki puncak intensitas pada sudut milik fasa kristal mordenit. Namun, jika dianalisa dari intensitas yang dimiliki oleh keempat sampel, sampel 500°C , 600°C dan 700°C memiliki tinggi intensitas yang serupa dan letak puncak yang hampir sama. Pada sampel 800°C , terdeteksi fasa pengotor kuarsa yang puncaknya terdeteksi pada 26.62° . Fasa pengotor kuarsa cenderung terbentuk pada rasio SiO_2 tinggi. Tingginya konsentrasi SiO_2 mengakibatkan fasa kristal kuarsa lebih mudah terbentuk meskipun pada waktu hidrotermal yang lebih rendah (Covarrubias, et al., 2006).

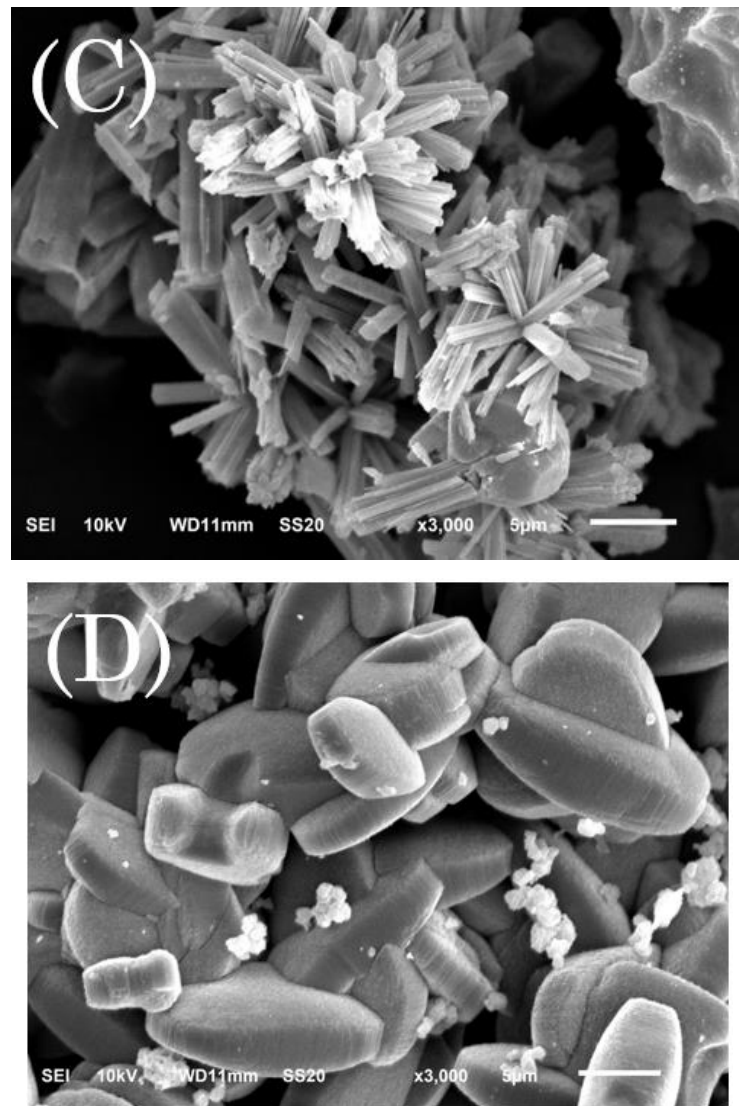
Pada variasi 800°C memiliki rasio Si/Al yang paling besar akan tetapi massa sampel yang terbentuk paling kecil. Mengacu pada fenomena ini dan hasil XRD, dapat disimpulkan bahwa fase kuarsa yang terbentuk pada variasi 800°C lebih banyak dibandingkan dengan variasi rasio yang lain. Kuarsa memiliki densitas yang lebih rendah dibandingkan dengan mordenit sehingga massa sampel yang terbentuk akan lebih ringan. Sampel dengan variasi 700°C diketahui memiliki hasil yang terbaik dengan massa dan rasio SiO_2 yang lebih mendekati Si/Al = 5 dibandingkan dengan variasi lain.

4.7 Hasil analisa SEM pada Mordenit

Gambar 4.6 menunjukkan Pola SEM sampel Mordenit (a) 500°C (b) 600°C (c) 700°C dan (d) 800°C Pada perbesaran 3000x, tekstur permukaan terlihat memiliki serat tajam seperti jarum dan banyak serat yang tidak terbentuk. Bentuk serat seperti jarum merupakan ciri zeolit mordenit. Gambar SEM untuk sampel MOR menunjukkan bahwa suhu kalsinasi yang lebih rendah seperti Gambar 4.6.A dan 4.6.B menghasilkan tipe zeolit dominan analsim (ANA) dengan MOR sebagai pengotor. Namun pada sampel

(C) hanya menghasilkan MOR tanpa pengotor. Suhu kalsinasi yang lebih tinggi meningkatkan kristalinitas mordenit, namun, puncak pengotor muncul pada pola difraksi sampel kalsinasi 800 °C seperti Zeolit tipe Y.





Gambar 4.6 Analisis SEM Mordenit variasi dari (a) 500 °C (b) 600°C (c) 700°C dan (d) 800°C

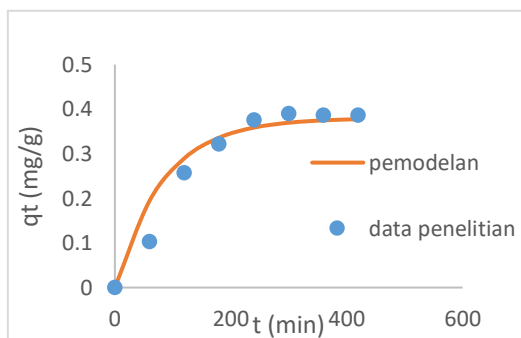
4.8 Kinetika adsorpsi ammonium

Adsorpsi ammonium pada mordenit dilakukan dengan sistem batch pada kondisi suhu ruang. Jumlah adsorben atau mordenit yang digunakan 10 g sebanyak satu sampel yang memiliki penyerapan terbesar ditambahkan dalam reaktor yang mengandung 50 ml larutan amonium klorida dengan konsentrasi 100 mg/L. Didiamkan selama 420 menit dengan diukur konsentrasi amonium setiap 60 menit sekali dengan menggunakan kolorimeter dan menghitung konsentrasi NH_4^+ yang teradsorpsi. Pada studi kinetika

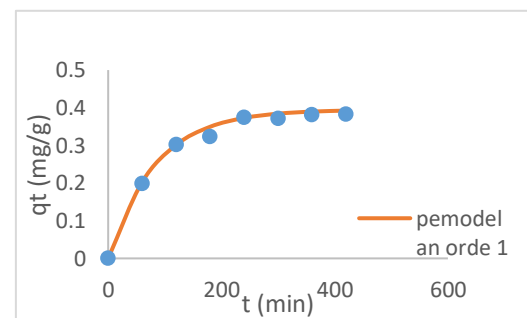
hasil percobaan dimodelkan dengan model pseudo first order, pseudo-second order, Elovich, dan intrapartikel difusi. Kinetika ini adalah yang umum digunakan untuk menggambarkan fenomena adsorpsi. Nilai SSE merupakan nilai yang menunjukkan eror dari model kinetika dengan hasil percobaan, semakin kecil nilainya maka semakin baik hasilnya. Model kinetika adsorpsi dioptimasi dengan analisis linierisasi dan non-linierisasi. Untuk menentukan model yang sesuai dengan hasil percobaan dapat ditentukan dari nilai Sum of Square Error (SSE) yang paling kecil. Untuk menghitung nilai sum squares of error (SSE) yang minimum untuk nilai SSE didefinisikan sebagai berikut:

$$SSE = \sum (q_{t_{hitung}} - q_{t_{data}})^2$$

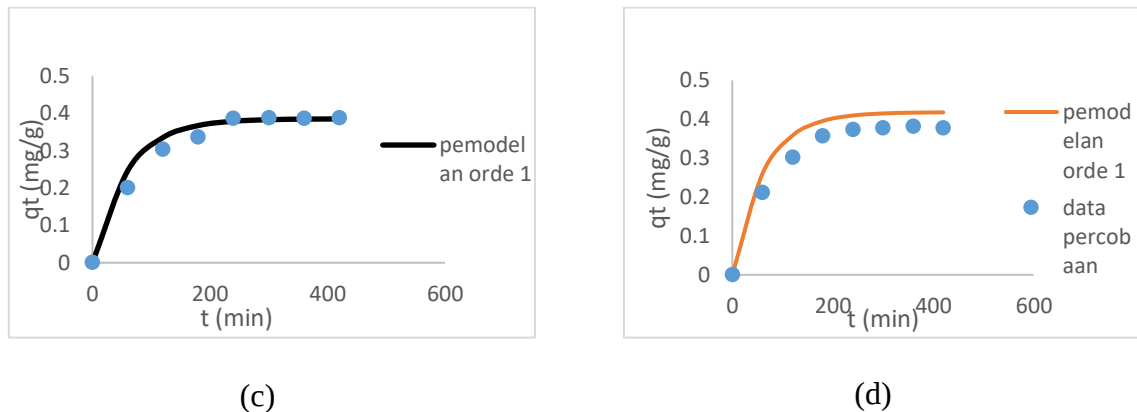
Berdasarkan hasil percobaan yang telah dioptimasi bahwa non-linierisasi memiliki nilai SSE rata-rata lebih kecil. Sehingga metode optimasi non-linierisasi lebih baik dibandingkan dengan metode optimasi linierisasi. Pada percobaan ini diperoleh grafik perbandingan antara hasil percobaan kinetika adsorpsi amonium oleh mordenit dengan model kinetika adsorpsi. Berikut ini merupakan grafik pemodelan pseudo-first order, pseudo-second order, Elovich, dan intrapartikel difusi.



(a)



(b)

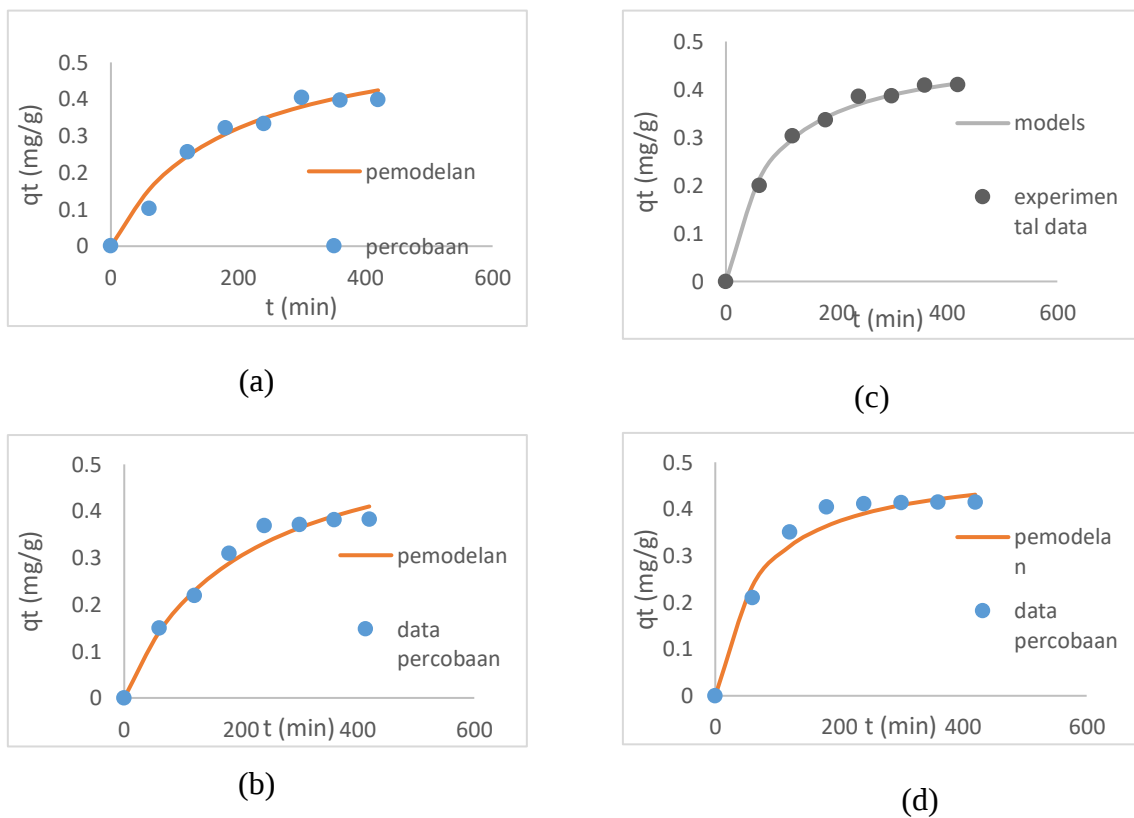


Gambar 4.7 variasi orde satu dari (a) 500 °C (b) 600 °C (c) 700 °C dan (d) 800 °C

Model kinetika orde satu merupakan salah satu pendekatan paling awal yang digunakan untuk menjelaskan laju proses adsorpsi dalam sistem fase cair–padat. Model ini berasumsi bahwa laju adsorpsi ion atau molekul adsorbat ke permukaan adsorben sebanding dengan jumlah konsentrasi situs aktif yang belum terisi. Model orde satu umumnya digunakan ketika adsorpsi terjadi dengan interaksi fisik (fisikadsorpsi) yang relatif lemah dan tidak melibatkan perubahan kimia pada permukaan adsorben. Karakteristik model ini mencerminkan proses adsorpsi yang cepat pada awal waktu dan melambat mendekati kesetimbangan. Namun, model ini sering kali tidak mampu menggambarkan keseluruhan proses adsorpsi secara akurat, terutama jika adsorpsi terjadi melalui mekanisme kimia (chemisorpsi) atau melibatkan difusi ke dalam pori yang lebih kompleks.

Pada Gambar 4.7 garis hitam menunjukkan hasil pemodelan kinetika adsorpsi, dan lingkaran merupakan hasil percobaan adsorpsi amonium menggunakan mordenit variasi 700 °C. Dari keempat grafik pada gambar 4.7 menunjukkan bahwa model kinetika pseudo-first order sesuai dengan hasil percobaan dan nilai SSE sebesar 0,002 dengan nilai k_1 sebesar 0,017. Nilai k_1 dalam model kinetika adsorpsi orde satu adalah konstanta laju adsorpsi pseudo-order satu, yang menyatakan seberapa cepat adsorbat (misalnya ion amonium) teradsorpsi ke permukaan adsorben (seperti mordenit) dalam satuan waktu tertentu. Nilai ini biasanya dinyatakan dalam satuan per-menit (min^{-1}). Nilai k_1 menggambarkan kecepatan awal dari proses adsorpsi. Semakin tinggi nilai k_1 , maka semakin cepat ion amonium akan terikat pada permukaan mordenit.

Artinya, pada nilai k_1 yang besar, sistem dengan cepat mendekati keadaan kesetimbangan. Sebaliknya, nilai k_1 yang rendah menunjukkan proses adsorpsi yang lambat, mungkin karena keterbatasan difusi atau kurangnya afinitas antara adsorbat dan situs aktif. Nilai k_1 sendiri hanya bermakna jika diperoleh dari hasil pemodelan yang baik. Dalam evaluasi kinetika, model orde satu dianggap cocok jika data eksperimental menunjukkan koefisien determinasi (R^2) yang tinggi dan nilai q_e hasil perhitungan mendekati nilai q_e dari data eksperimen. Jika nilai k_1 tinggi namun q_e sangat berbeda dari data aktual, maka model tidak valid meskipun secara visual grafiknya tampak linier. Dari hasil percobaan diperoleh bahwa jumlah amonium yang teradsorpsi oleh mordenit mengalami peningkatan setiap pertambahan waktu. Namun, peningkatan amonium yang teradsorpsi tersebut semakin lama waktu, mengalami peningkatan yang tidak signifikan atau sangat kecil. Hal ini disebabkan karena banyaknya amonium yang teradsorpsi oleh mordenit pada setiap waktu akan bertambah dan amonium akan menumpuk di permukaan mordenit sehingga mencapai kesetimbangan

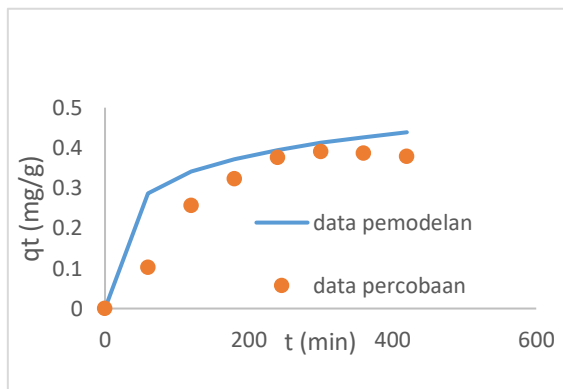


Gambar 4.8 kinetika orde dua pada (a) 500°C (b) 600°C (c) 700 °C dan (d) 800 °C

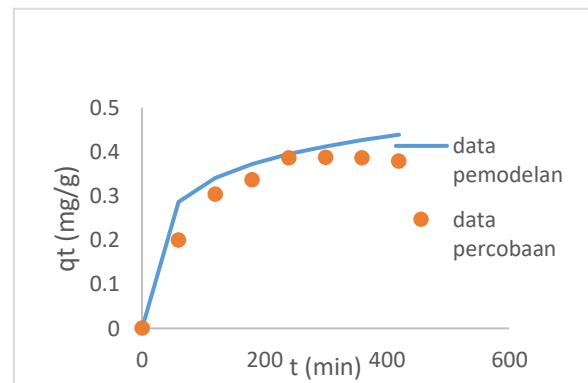
Pada model 500°C, 600°C, 700°C dan 800 °C model kinetika pseudo-second order digunakan untuk menghitung laju adsorpsi yang sangat besar. Dalam studi kinetika adsorpsi ion ammonium (NH_4^+) pada mordenit, terdapat kemungkinan bahwa model kinetika orde satu dan orde dua keduanya dapat digunakan untuk menggambarkan proses yang sama dengan akurasi yang tinggi. Perbedaan utama antara kedua model tersebut terletak pada asumsi dasar mengenai laju proses adsorpsi. Model orde satu mengasumsikan bahwa laju adsorpsi berbanding lurus dengan konsentrasi ion ammonium yang tersisa dalam larutan, dan biasanya diterapkan pada proses di mana ion ammonium berikatan lebih lemah dengan situs aktif pada permukaan adsorben atau ketika desorpsi terjadi lebih lambat. Sebaliknya, model orde dua mengasumsikan bahwa laju adsorpsi berbanding lurus dengan kuadrat konsentrasi ion ammonium dalam larutan, yang lebih cocok untuk menggambarkan proses di mana ion ammonium berikatan lebih kuat dengan situs aktif pada permukaan zeolit, terutama pada tahap awal adsorpsi. Ketika kedua model ini sama-sama cocok, hal ini dapat menunjukkan bahwa proses adsorpsi pada mordenit mengikuti mekanisme yang lebih kompleks dan dinamis, di mana pada awal proses, laju adsorpsi mengikuti karakteristik orde dua, yang menggambarkan interaksi kuat antara ion NH_4^+ dengan situs aktif pada mordenit. Namun, seiring berjalannya waktu, ion ammonium yang tersedia untuk diadsorpsi berkurang, dan proses adsorpsi bergerak menuju kondisi kesetimbangan, yang ditandai dengan penurunan laju adsorpsi dan perubahan pola yang lebih sesuai dengan model orde satu. Fenomena ini mungkin mencerminkan adanya transisi mekanisme adsorpsi yang disebabkan oleh faktor-faktor seperti penurunan konsentrasi ion NH_4^+ dalam larutan atau perubahan sifat interaksi antara ion ammonium dan situs aktif seiring berjalannya waktu.

Secara umum, kesesuaian model orde dua terhadap data eksperimen ditunjukkan oleh nilai R^2 yang tinggi, serta kedekatan antara nilai q_e teoritis dan q_e eksperimental. Jika model ini paling cocok dibandingkan model kinetika lain seperti orde satu, Elovich, atau difusi intrapartikel, maka dapat disimpulkan bahwa proses adsorpsi amonium pada mordenit tidak hanya dikendalikan oleh difusi, tetapi juga melibatkan reaksi permukaan yang bersifat kimia. Nilai konstanta laju k_2 pada orde 2 menunjukkan kecepatan interaksi kimia tersebut, dan nilai yang lebih tinggi mengindikasikan laju adsorpsi yang

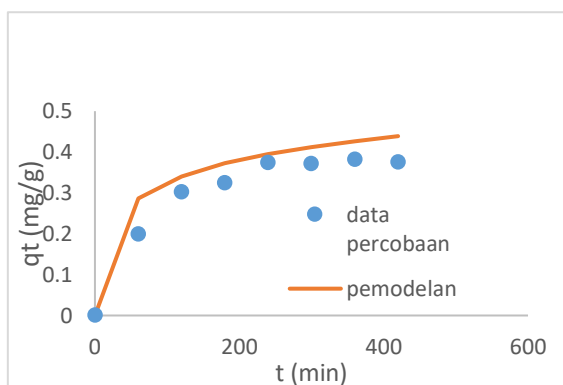
lebih cepat dan efisien. Selain itu, karena model ini mempertimbangkan peran permukaan adsorben dalam ikatan kuat terhadap adsorbat, maka adsorben dengan sifat asam tinggi, rasio Si/Al rendah, dan kristalinitas baik cenderung mendukung kesesuaian data terhadap model ini. Oleh karena itu, pengaruh berbagai faktor eksternal seperti suhu, pH larutan, dan konsentrasi awal ion ammonium perlu dipertimbangkan untuk memahami secara lebih mendalam mekanisme yang mendasari kinetika adsorpsi ini. Jika kedua model tersebut dapat menggambarkan data eksperimen dengan baik, hal ini menyiratkan bahwa proses adsorpsi pada mordenit lebih kompleks daripada yang diperkirakan sebelumnya dan mungkin melibatkan fase-fase adsorpsi yang berbeda dengan laju yang bervariasi.



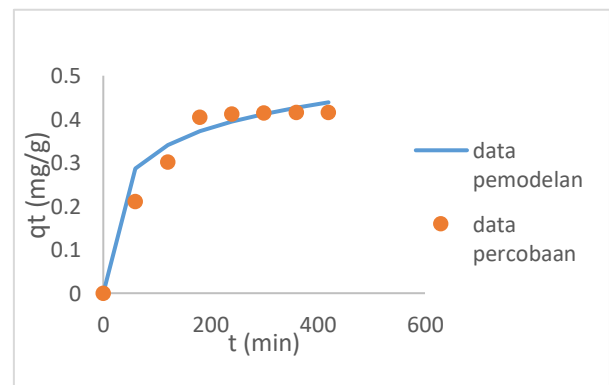
(a)



(c)



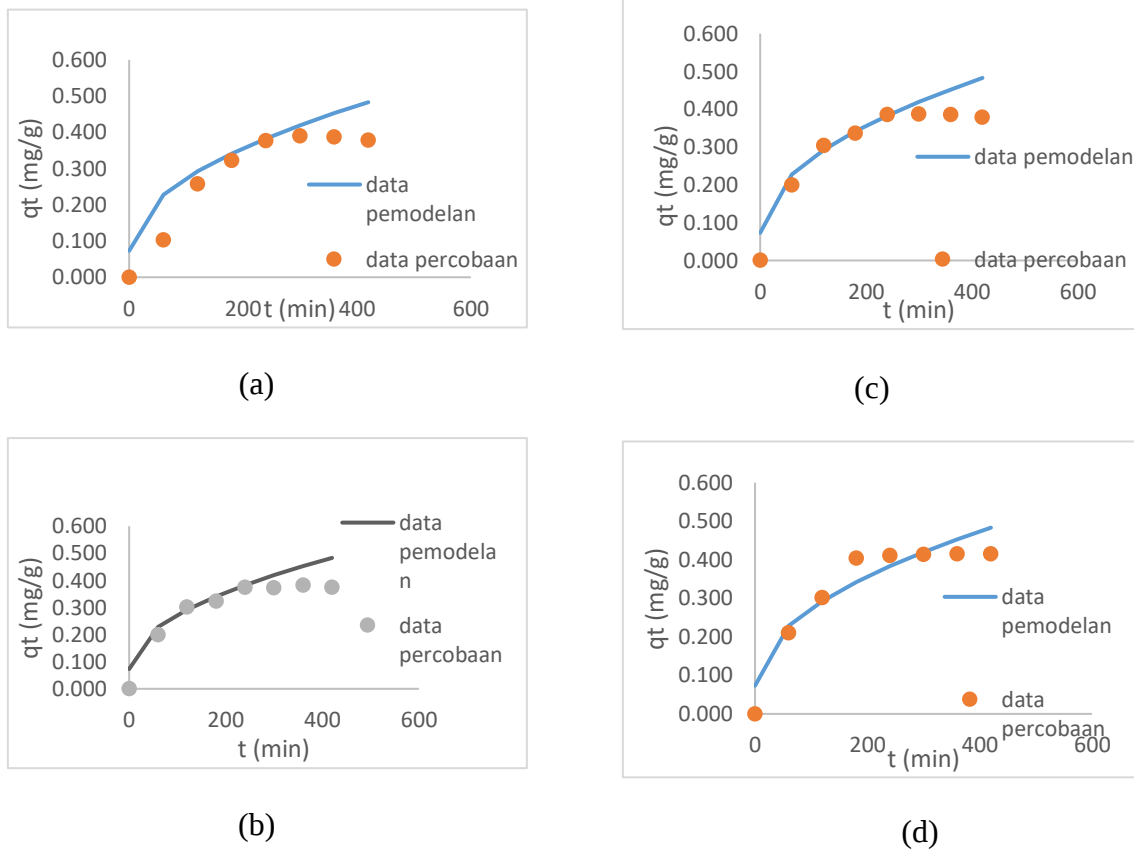
(b)



(d)

Gambar 4.9 kinetika elovich dari variasi (a) 500°C; (b) 600°C (c) 700 °C dan (d) 800°C

Model Elovich digunakan untuk menggambarkan kinetika adsorpsi ion amonium (NH_4^+) pada mordenit, terutama ketika proses adsorpsi melibatkan interaksi kimia yang lebih kompleks antara adsorbat dan adsorben. Model ini cocok diterapkan pada sistem adsorpsi dengan permukaan adsorben yang heterogen, di mana energi adsorpsi tidak seragam di seluruh permukaan. Dalam penelitian ini, model Elovich dijadikan pilihan untuk menggambarkan penurunan laju adsorpsi yang tidak konstan seiring dengan waktu. Proses adsorpsi dimulai dengan laju yang relatif cepat, ketika banyak situs aktif kosong pada permukaan mordenit, namun laju adsorpsi kemudian menurun secara eksponensial seiring dengan meningkatnya jumlah ion amonium yang teradsorpsi. Hal ini terlihat dari hubungan linier antara qt dan $\ln(t)$, di mana parameter α menggambarkan laju adsorpsi awal yang cepat dan β menunjukkan penurunan laju adsorpsi seiring waktu. Nilai α dan β yang diperoleh dari data eksperimen memberikan gambaran tentang dinamika adsorpsi pada mordenit, yang menunjukkan bahwa proses ini dipengaruhi oleh kekuatan ikatan kimia antara ion amonium dan permukaan adsorben. Selain itu, kesesuaian model ini dengan data eksperimen, yang tercermin dalam koefisien determinasi (R^2) yang tinggi, menunjukkan bahwa adsorpsi amonium pada mordenit lebih cenderung melibatkan interaksi kimia (chemisorption) dibandingkan dengan adsorpsi fisik. Oleh karena itu, model Elovich dapat digunakan untuk memahami lebih dalam mekanisme adsorpsi ion amonium pada mordenit dan memperkirakan laju serta kapasitas adsorpsi sistem pada kondisi tertentu. Model kinetika adsorpsi Elovich memiliki model yang cukup baik bila dibandingkan dengan model kinetika intrapartikel difusi sehingga dapat dikatakan bahwa adsorpsi amonium oleh Mordenit selain cocok dengan model kinetik adsorpsi pseudo-first order juga cocok dengan model kinetika adsorpsi Elovich. Hal ini merupakan indikasi bahwa amonium yang diadsorpsi oleh mordenit merupakan adsorpsi yang permukaannya bersifat heterogen.



Gambar 4.10 kinetika interpartikel difusi dari (a) 500 °C (b) 600 °C (c) 700 °C dan (d) 800 °C

Karena pendekatan model kinetika pseudo-first order dan pseudo-second order tidak menjelaskan mengenai mekanisme kinetika adsorpsi, maka perlu digunakan model difusi intrapartikel untuk melihat difusi apa yang berpengaruh pada kinetika adsorpsi. Zeolit mordenit memiliki struktur mikropori yang kompleks, sehingga proses penetrasi ion ammonium ke dalam pori-pori dapat menjadi tahap pembatas laju (*rate-limiting step*) dalam keseluruhan proses adsorpsi. Untuk mengidentifikasi peran difusi intrapartikel, model kinetika Weber–Morris kerap digunakan. Model ini menyatakan bahwa jika grafik antara q_t dan $t^{1/2}$ menghasilkan garis lurus yang melalui titik asal, maka difusi intrapartikel merupakan mekanisme dominan dalam adsorpsi. Namun, jika garis lurus tersebut memiliki intercept (C) yang signifikan, hal ini menunjukkan bahwa proses adsorpsi dikendalikan oleh lebih dari satu mekanisme, yaitu kombinasi antara difusi film eksternal dan difusi dalam pori. Semakin besar nilai C maka semakin tebal

boundary layer, yang artinya difusi film menjadi lebih dominan dibandingkan intrapartikel difusi hal ini juga dapat terlihat pada grafik gambar 4.10 dimana q_t vs $t^{1/2}$ tidak melalui titik asal ($C \neq 0$), maka difusi intrapartikel bukan satu-satunya mekanisme, melainkan ada mekanisme tambahan seperti difusi film (pada permukaan) dan adsorpsi kimia pada situs aktif permukaan

. Selain itu, perbandingan laju adsorpsi antar partikel zeolit dengan ukuran berbeda juga dapat digunakan untuk mengonfirmasi keterlibatan hambatan difusi; di mana partikel dengan ukuran lebih kecil umumnya menunjukkan laju adsorpsi yang lebih cepat akibat jarak difusi yang lebih pendek. Oleh karena itu, dalam sistem adsorpsi ion ammonium oleh zeolit mordenit, keberadaan hambatan difusi interpartikel harus dipertimbangkan secara serius dalam perancangan proses dan interpretasi model kinetika, terutama ketika proses berlangsung lambat atau tidak mencapai kesetimbangan dalam waktu singkat (Weber & Morris, 1963; Ho & McKay, 1999).

Tabel 4.2 parameter kinetika adsorpsi pada beberapa variasi

Kinetic Models	Variasi suhu (°C)	Parameters			Error
Lagergren's 1 st order		$K_L [h^{-1}]$	q_e	R^2	SSE [mg^2/g^2]
	500	0,012	0,37	0,876	0,001
	600	0,012	0,395	0,841	0,009
	700	0,017	0,385	0,425	0,0041
	800	0,162	0,4181	0,783	0,0125
Pseudo 2 nd order	Variasi suhu (°C)	$K_s [g\ mg^{-1}\ h^{-1}]$	q_e	R^2	SSE [mg^2/g^2]
	500	0,0076	0,601	0,831	0,00946
	600	0,00656	0,62	0,934	0,008
	700	0,0259	0,49	0,9701	0,0055
	800	0,029	0,5	0,982	0,0040
Elovich	Variasi suhu (°C)	α	β	R^2	SSE [mg^2/g^2]
	500	13,51	0,0382	0,88	0,027

	600	13,2	0,51	0,79	0,0136
	700	14,46	0,069	0,721	0,0061
	800	12,64	0,0482	0,719	0,009
Intraparticle diffusion	Variasi suhu (°C)	k_i	C	R^2	SSE [mg^2/g^2]
	500	0,023	0,0731	0,921	0,0389
	600	0,0158	0,055	0,915	0,02
	700	0,023	0,033	0,916	0,015
	800	0,02	0,098	0,93	0,026

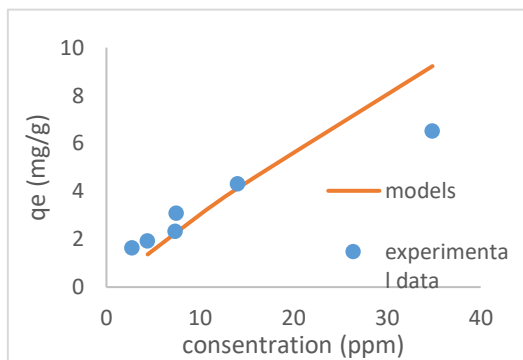
Dapat dilihat pada tabel 4.2 model orde dua, intrapartikel difusi, dan Elovich yang sesuai untuk menggambarkan kinetika adsorpsi ion amonium pada mordenit, ini menunjukkan bahwa proses adsorpsi yang terjadi melibatkan beberapa mekanisme yang saling berinteraksi dan mempengaruhi laju adsorpsi secara kompleks. Model orde dua menggambarkan bahwa laju adsorpsi sebanding dengan kuadrat konsentrasi ion amonium yang teradsorpsi, yang mengindikasikan adanya pengaruh interaksi antara molekul adsorbat dan situs aktif pada permukaan mordenit. Proses ini kemungkinan besar terjadi pada konsentrasi ion amonium yang tinggi, di mana adsorpsi berlangsung cepat pada tahap awal dan kemudian melambat seiring penurunan konsentrasi ion di larutan. Sementara itu, model intrapartikel difusi menekankan bahwa difusi ion amonium ke dalam pori-pori mordenit menjadi langkah pembatas dalam laju adsorpsi, yang berarti bahwa kecepatan proses adsorpsi dipengaruhi oleh seberapa cepat ion amonium dapat bergerak menuju situs aktif di dalam adsorben. Pada tahap ini, difusi menjadi kendala utama, terutama jika ukuran pori mordenit kecil atau jika konsentrasi ion amonium dalam larutan cukup tinggi. Selain itu, model Elovich mengungkapkan bahwa adsorpsi terjadi pada situs yang heterogen dengan energi adsorpsi yang bervariasi, yang menyebabkan laju adsorpsi berkurang seiring waktu karena berkurangnya jumlah situs aktif yang tersedia. Model ini sangat relevan untuk menggambarkan adsorpsi pada permukaan dengan energi adsorpsi yang tidak seragam, seperti pada mordenit. Ketiga model ini secara bersama-sama menjelaskan bahwa

adsorpsi ion amonium pada mordenit merupakan proses yang kompleks, di mana interaksi antara ion adsorbat, difusi ke dalam pori-pori adsorben, serta variabilitas energi adsorpsi pada situs yang berbeda saling mempengaruhi laju dan kapasitas adsorpsi.

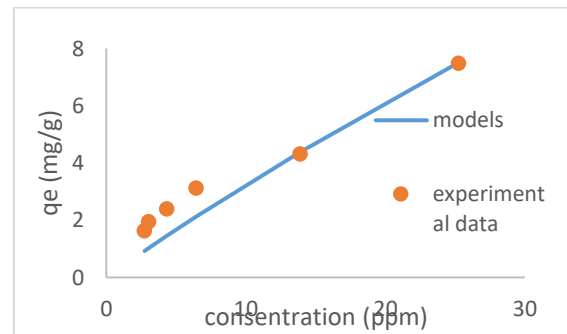
Keberadaan pengotor dalam silika hasil kalsinasi abu sekam padi terbukti memiliki pengaruh signifikan terhadap karakteristik mordenit yang terbentuk, khususnya dalam hal kapasitas adsorpsi ion amonium. Pengotor-pengotor seperti logam alkali (Na, K) dan alkali tanah (Ca, Mg), residu karbon, atau senyawa organik yang tidak terdekomposisi sempurna selama proses kalsinasi dapat mengganggu proses kristalisasi mordenit serta menurunkan kualitas struktur yang terbentuk. Secara spesifik, pengotor tersebut dapat menutupi atau bahkan menempati situs aktif pada permukaan mordenit, sehingga mengurangi jumlah situs yang tersedia untuk berinteraksi dengan ion amonium. Selain itu, keberadaan logam pengotor dapat menetralkan situs asam Brønsted yang berperan penting dalam mekanisme adsorpsi ionik terhadap NH_4^+ , sehingga sifat asam permukaan mordenit menjadi lemah. Dalam konteks pemodelan kinetika adsorpsi, keberadaan pengotor ini dapat menyebabkan penurunan nilai kapasitas adsorpsi maksimum. Dalam hal ini pada suhu 700°C dan 800°C memiliki tingkat pengotor lebih rendah daripada suhu 500°C dan 600°C yang mengakibatkan nilai kapasitas adsorpsi maksimum berbeda.

4.9 Keseimbangan adsorpsi amonium

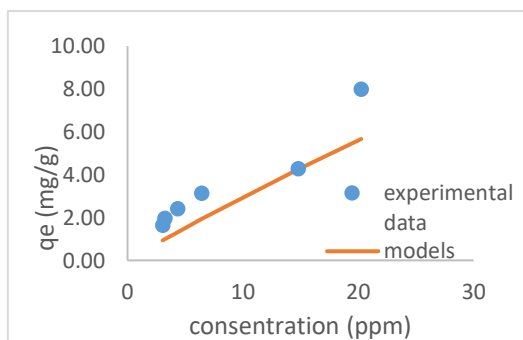
Adsorpsi dilakukan dengan sistem batch pada kondisi suhu ruang, jumlah adsorben atau mordenit yang digunakan dengan variasi 0,5; 1; 1,5; 2; 2,5 and 3 gram. yang ditambahkan dalam reaktor yang mengandung 50 ml larutan amonium klorida dengan konsentrasi 100 ppm (100 mg/L) kemudian didiamkan selama 3x24 jam. Setelah mencapai keseimbangan sampel adsorben dipisahkan dengan kertas saring. Selanjutnya larutan amonium klorida diukur dengan menggunakan kolorimeter dan menghitung kandungan NH_4^+ yang teradsorpsi. Pada studi keseimbangan hasil percobaan akan dioptimasi dengan model isoterm Freundlich, Langmuir, dan Temkin. Dari model isoterm Langmuir, isoterm Freundlich, dan isoterm Temkin yang paling cocok dengan hasil percobaan yaitu model



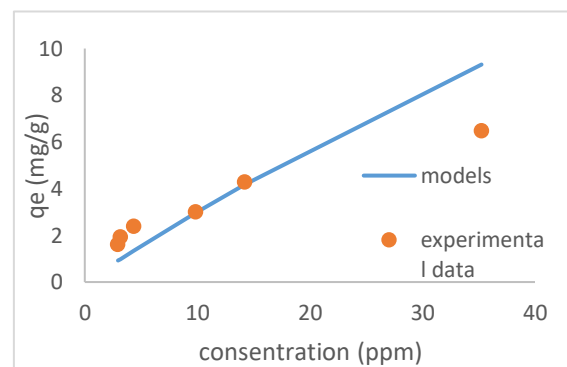
(a)



(c)



(b)

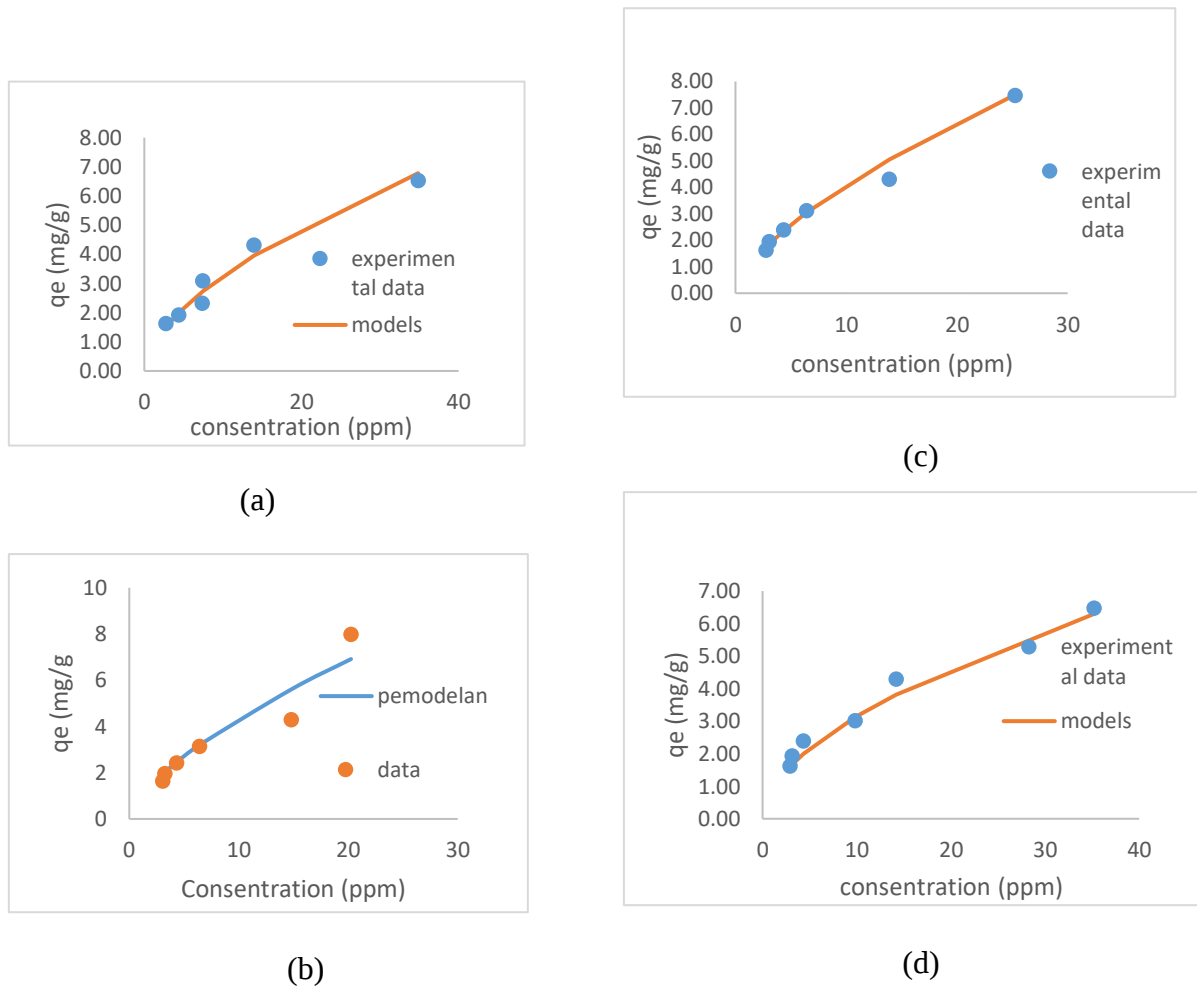


(d)

Gambar 4.11 grafik isotherm Langmuir variasi (a) 500 °C (b) 600 °C (c) 700 °C dan (d) 800 °C

Model isotrem Langmuir merupakan adsorpsi yang memiliki satu lapisan tunggal (monolayer) dan homogen. Model ini digunakan untuk menggambarkan proses adsorpsi ion amonium (NH_4^+) pada mordenit, di mana setiap situs aktif dianggap memiliki afinitas yang sama terhadap ion amonium. Persamaan Langmuir menunjukkan bahwa kapasitas adsorpsi maksimum (q_m) dapat dicapai setelah seluruh situs aktif pada permukaan mordenit terisi oleh ion amonium. Berdasarkan data eksperimen, nilai q_m dan K_L dihitung melalui plot $\frac{1}{q_e}$ terhadap $\frac{1}{C_e}$, yang menunjukkan kecenderungan adsorbat untuk menempati situs-situs aktif dengan energi yang seragam. Nilai K_L yang tinggi pada masing-masing variasi mengindikasikan bahwa ion amonium memiliki afinitas yang kuat terhadap permukaan mordenit, mendukung kesimpulan bahwa interaksi elektrostatis dan ikatan ionik antara NH_4^+ dan situs aktif mordenit memainkan peran

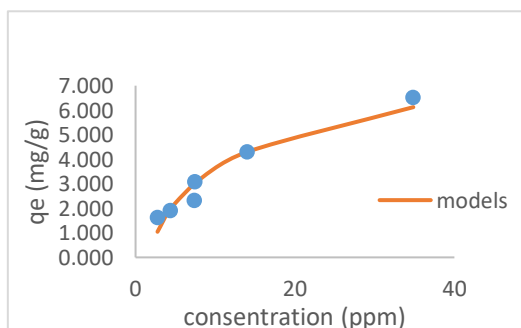
penting dalam proses adsorpsi. Model Langmuir ini memberikan wawasan yang berguna untuk memahami kapasitas adsorpsi sistem dan dapat digunakan untuk merancang proses adsorpsi yang lebih efisien.



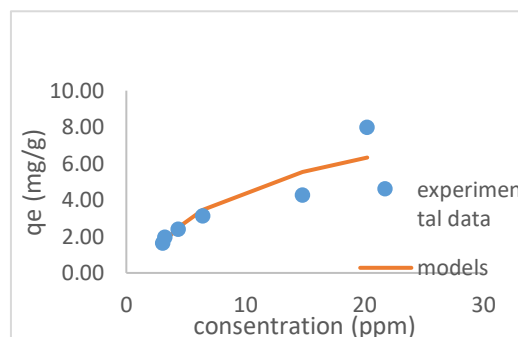
Gambar 4.12 grafik Freundlich dari (a) 500°C; (b) 600°C; (c) 700°C dan (d) 800°C

Model Freundlich adalah salah satu model isoterm adsorpsi non-linier yang paling umum digunakan untuk menggambarkan adsorpsi pada permukaan yang heterogen, yaitu permukaan adsorben yang memiliki situs aktif dengan energi adsorpsi yang tidak seragam. Tidak seperti model Langmuir yang mengasumsikan adsorpsi monolayer pada permukaan homogen, model Freundlich mengakomodasi adsorpsi multilayer dan bervariasinya kekuatan interaksi antara adsorbat dan adsorben. Model ini bersifat empiris, namun tetap sangat relevan dan sering digunakan dalam sistem

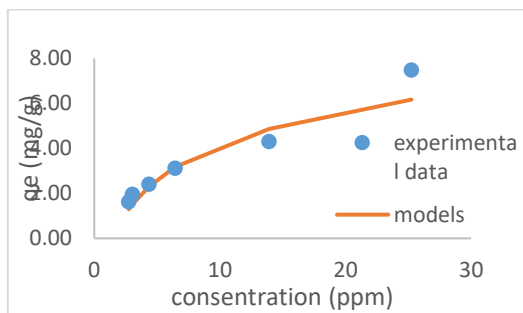
nyata, termasuk adsorpsi ion logam, pewarna, maupun ion amonium (NH_4^+) pada material seperti mordenit. Model Freundlich diterapkan untuk menggambarkan proses adsorpsi ion amonium (NH_4^+) pada mordenit, yang memiliki permukaan berpori dengan sifat heterogen. Nilai konstanta Freundlich K_F yang diperoleh menunjukkan kapasitas relatif mordenit dalam mengadsorpsi ion amonium, sedangkan nilai $1/n$ yang lebih kecil dari satu menunjukkan bahwa proses adsorpsi berlangsung secara favorable, terutama pada konsentrasi ion amonium yang rendah. Kesesuaiannya dengan data eksperimen mengindikasikan bahwa adsorpsi tidak terbatas pada satu lapisan permukaan saja (*multilayer*) dan bahwa terdapat variasi energi adsorpsi di antara situs aktif mordenit. Hal ini mendukung hipotesis bahwa karakteristik mikropori dan keasaman permukaan mordenit memungkinkan terjadinya adsorpsi dengan intensitas yang berbeda-beda, yang lebih sesuai dengan pendekatan model Freundlich dibandingkan model Langmuir sebelumnya. Dari Gambar 4.12 menunjukkan bahwa setiap variasi dengan pemodelan isotherm Freundlich sesuai dengan hasil percobaan. Dengan data $1/n$ kurang dari 1 proses adsorpsi terjadi dengan efisiensi tinggi bahkan pada konsentrasi larutan yang rendah. Hal ini mencerminkan tingginya afinitas antara permukaan mordenit dan ion amonium, yang didukung oleh keberadaan situs aktif dengan energi adsorpsi yang bervariasi namun dominan kuat. Keberadaan muatan negatif pada struktur kerangka mordenit akibat substitusi Al^{3+} dalam kisi silikat memberikan daya tarik elektrostatis terhadap kation NH_4^+ , yang memperkuat kapasitas adsorpsi. Oleh karena itu, mordenit dengan karakteristik ini sangat sesuai untuk aplikasi penghilangan amonium dari air limbah pada skala rendah hingga sedang.



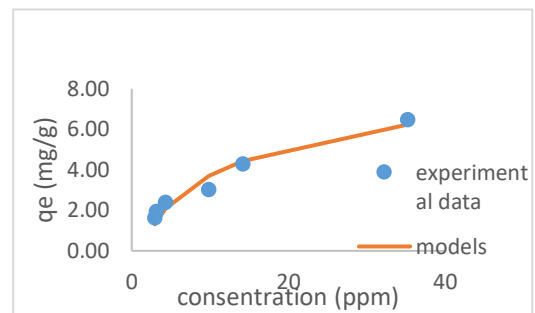
(a)



(b)



(c)



(d)

Gambar 4.13. grafik isotherm temkin (a) 500°C; (b) 600°C; (c) 700°C dan (d) 800°C

Model isotherm Temkin diterapkan untuk menggambarkan karakteristik adsorpsi ion amonium pada mordenit dengan mempertimbangkan adanya penurunan energi adsorpsi selama proses berlangsung. Nilai konstanta Temkin K_T yang diperoleh menunjukkan afinitas awal antara permukaan mordenit dengan ion amonium, sedangkan konstanta B mencerminkan karakter penurunan energi adsorpsi akibat interaksi antar molekul. Sesuai dengan asumsi model Temkin, hasil adsorpsi menunjukkan bahwa peningkatan konsentrasi amonium menyebabkan perubahan bertahap pada energi ikatan, yang menunjukkan bahwa situs aktif pada mordenit tidak identik secara energi. Oleh karena itu, kesesuaian data eksperimen dengan model Temkin mengindikasikan bahwa mordenit memiliki karakter permukaan yang cukup heterogen namun mendukung interaksi adsorptif yang kuat dan stabil pada rentang konsentrasi tertentu. Pada model isotherm Temkin menunjukkan bahwa model isotherm hampir mendekati dengan hasil percobaan. Dapat dilihat dari nilai Nilai Koefisien Determinasi (R^2) Semakin mendekati 1, maka semakin baik model Temkin dalam mendeskripsikan hubungan antara q_e dan C_e . Pemodelan isotherm Temkin menunjukkan nilai koefisien determinasi (R^2) sebesar 0.982, yang menunjukkan bahwa model ini lebih representatif dalam menggambarkan perilaku adsorpsi ion amonium pada mordenit. Selain itu, nilai parameter B yang diperoleh sebesar 2 J/mol mengindikasikan bahwa penurunan energi adsorpsi terjadi secara moderat dan konsisten dengan sifat permukaan mordenit yang heterogen. Kesesuaian antara model Temkin dengan data eksperimental ini juga memperkuat asumsi bahwa interaksi antar molekul adsorbat serta energi adsorpsi yang berubah seiring cakupan permukaan menjadi faktor penting dalam sistem adsorpsi ini. Pada penelitian ini mengindikasikan kemungkinan adsorpsi ammonium dengan zeolit mordenit berlangsung pada lapisan yang lebih dari satu layer atau multilayer. Adsorpsi multilayer sering terjadi pada proses reversibel yang cepat, sehingga bersifat mudah diganti dengan molekul lain.

Tabel 4. 3. Parameter isotherm kesetimbangan adsorbsi

Isotherm Models	Variasi	Parameters			Error
Langmuir	Suhu (°C)	q_{max}	K_L [L/mg]	R^2	SSE [mg ² /g ²]
	500	48,87	0,005	0,94	5,5

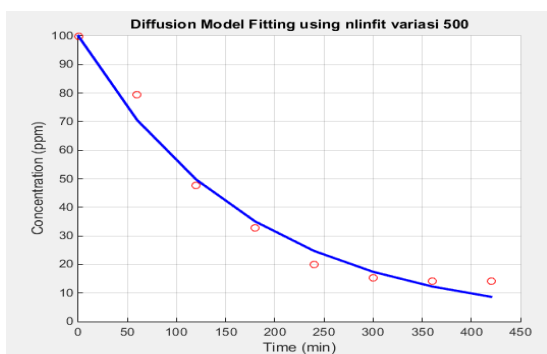
	600	53,4	0,0049	0,91	9,20
	700	57.8	0.0059	0,98	3.22
	800	54,8	0,0058	0,96	10,55
Freundlich	Suhu (°C)	K_f [L ^{1.1} /(g.mg ^{0.1})]	n[-]	R ²	SSE [mg ² /g ²]
	500	0,84	1,7	0,96	0,48
	600	0,92	1,49	0,94	3,03
	700	0,89	1,515	0,98	0,02
	800	0,89	1,82	0,97	0,4
Tempkin	Suhu(°C)	B	K _T [L/mg]	R ²	SSE [mg ² /g ²]
	500	2,001	0,6120	0,94	0,995
	600	2,43	0,631	0,984	0,997
	700	2,0	0,612542	0,982	0,95
	800	1,95	0,752	0,95	0,999

Jika pemodelan adsorpsi ion amonium pada mordenit hanya cocok dengan model Freundlich dan Temkin, ini menunjukkan bahwa proses adsorpsi yang terjadi pada permukaan mordenit bersifat heterogen dan melibatkan interaksi yang kompleks antara ion amonium yang teradsorpsi. Model Freundlich, yang menggambarkan adsorpsi pada permukaan dengan energi adsorpsi yang bervariasi, menunjukkan bahwa situs adsorpsi mordenit tidak seragam, dan terdapat heterogenitas energi adsorpsi di seluruh permukaan adsorben. Variasi dalam energi adsorpsi ini memungkinkan terjadinya adsorpsi multilayer, yang berarti ion amonium dapat teradsorpsi lebih dari satu lapisan pada permukaan mordenit, tergantung pada konsentrasi ion dalam larutan. Di sisi lain, model Temkin mengindikasikan bahwa ada interaksi antar adsorbat yang mempengaruhi laju adsorpsi. Seiring meningkatnya jumlah ion amonium yang teradsorpsi, interaksi antara ion-ion tersebut menyebabkan penurunan energi adsorpsi secara linier, yang berbeda dengan model Langmuir yang mengasumsikan bahwa energi adsorpsi tetap konstan. Dengan demikian, penggunaan kedua model ini menunjukkan bahwa adsorpsi pada mordenit lebih kompleks daripada yang dapat dijelaskan oleh model Langmuir yang hanya

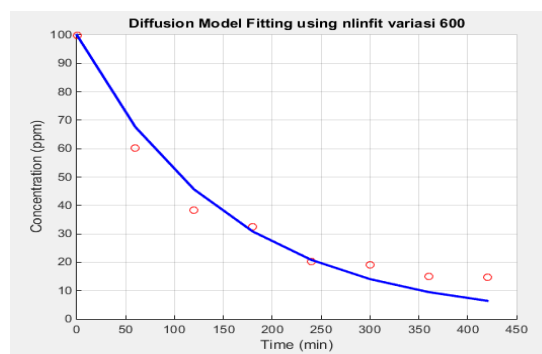
mengasumsikan situs adsorpsi seragam dan tanpa interaksi antar adsorbat. Oleh karena itu, model Freundlich dan Temkin lebih cocok untuk menggambarkan adsorpsi heterogen pada mordenit, di mana proses adsorpsi dipengaruhi oleh baik variasi dalam afinitas situs adsorpsi maupun interaksi antar ion amonium yang teradsorpsi. Pemahaman ini sangat penting dalam merancang sistem adsorpsi yang lebih efisien untuk aplikasi seperti pengolahan air limbah atau pemurnian air yang mengandung ion amonium, di mana faktor-faktor heterogenitas dan interaksi adsorbat harus dipertimbangkan untuk mengoptimalkan kapasitas dan laju adsorpsi.

Keberadaan pengotor dalam silika hasil kalsinasi abu sekam padi terbukti memiliki pengaruh signifikan terhadap karakteristik mordenit yang terbentuk, khususnya dalam hal kapasitas adsorpsi ion amonium. Pengotor-pengotor seperti logam alkali (Na, K) dan alkali tanah (Ca, Mg), residu karbon, atau senyawa organik yang tidak terdekomposisi sempurna selama proses kalsinasi dapat mengganggu proses kristalisasi mordenit serta menurunkan kualitas struktur yang terbentuk. Secara spesifik, pengotor tersebut dapat menutupi atau bahkan menempati situs aktif pada permukaan mordenit, sehingga mengurangi jumlah situs yang tersedia untuk berinteraksi dengan ion amonium. Selain itu, keberadaan logam pengotor dapat menetralkan situs asam Brønsted yang berperan penting dalam mekanisme adsorpsi ionik terhadap NH_4^+ , sehingga sifat asam permukaan mordenit menjadi lemah. Dalam konteks pemodelan kesetimbangan adsorpsi, keberadaan pengotor ini dapat menyebabkan penurunan nilai kapasitas adsorpsi maksimum. Dalam hal ini pada suhu 700°C dan 800°C memiliki tingkat pengotor lebih rendah daripada suhu 500°C dan 600°C yang mengakibatkan nilai kapasitas adsorpsi maksimum berbeda.

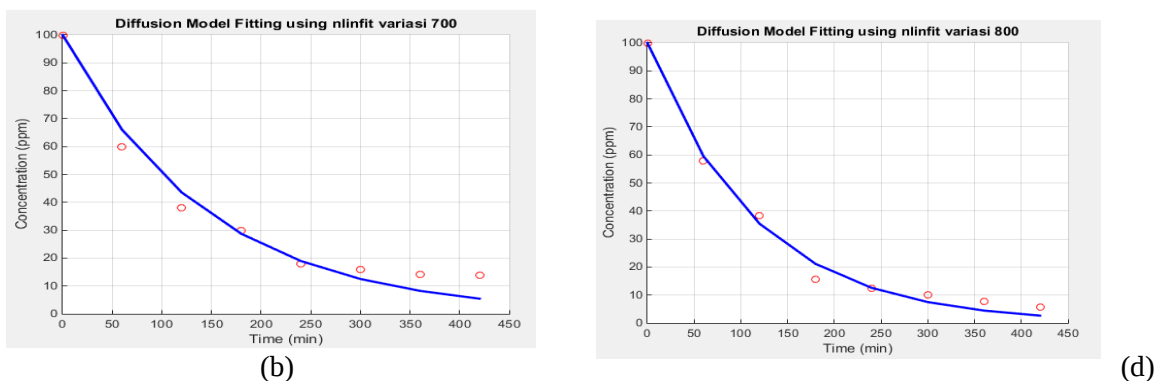
4.10 Transfer massa difusi radial model



(a)



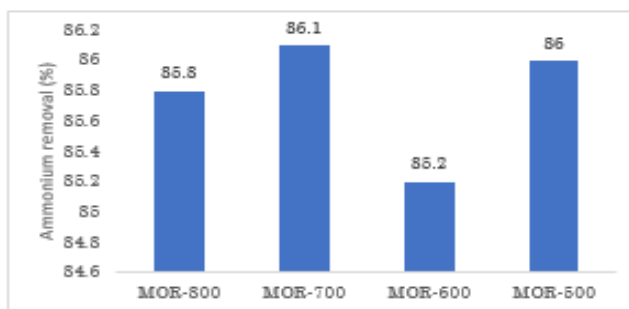
(b)



Gambar 4.14. grafik Difusi radial (a) 500; (b) 600; (c) 700 dan (d) 800

Pada model Difusi radial menunjukkan bahwa model isotherm hampir mendekati dengan hasil percobaan Difusi radial menggambarkan perilaku system adsorpsi mengacu pada pergerakan molekul adsorbat dari larutan menuju permukaan adsorben dalam arah radial, terutama ketika adsorben berbentuk partikel berpori atau berbentuk bola. Pada penelitian ini mengindikasikan kemungkinan adsorpsi ammonium dengan zeolit mordenit berlangsung pada Molekul-molekul adsorbat harus bergerak dari larutan menuju permukaan partikel adsorben. Jika partikel berbentuk bola atau butiran, difusi terjadi secara radial dari luar ke dalam. Dalam hal ini pada grafik difusi mordenit (a) nilai difusivitas efektif (D_e) $9.837782 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$, nilai nilai difusivitas efektif (D_e) pada grafik (b) $1.103732 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ pada grafik (c) Estimated Diffusivity D_e : $1.170383 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ dan grafik (d) $1.459816 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$

4.11. Potensi Pemanfaatan Mordenit dari silika abu sekam padi



Gambar 4.15 grafik penyerapan ammonium setiap variasi

Gambar 4.15 menunjukkan hasil tabel penyerapan amonium bahwa MOR-700 memiliki laju penyerapan yang lebih tinggi dibandingkan jenis lainnya yaitu sebesar 86.1%, hal ini

dipengaruhi oleh jumlah kandungan mordenit di dalamnya dibandingkan dengan MOR-800 serta variasi lainnya yang disebabkan oleh pengotor yang terbentuk dari setiap variasi mordenit. Penghilangan amoniumnya hampir sama dengan yang dicapai oleh mordenit sintesis, dengan laju penyerapan sebesar 88%. Berdasarkan karakterisasi yang telah dilakukan, zeolit Mordenit dari sekam padi memiliki potensi pemanfaatan di bidang pengolahan limbah dan air, pertanian, dan peternakan. Air limbah dan air baku yang memiliki kandungan amonium di atas ambang batas dapat diolah terlebih dahulu dengan menambahkan mordenit yang telah diolah terlebih dahulu dari sekam padi yang merupakan limbah pertanian. Mordenit dari sekam padi sangat berpotensi untuk dimanfaatkan dalam bidang pertanian dan peternakan. Daerah selatan Banten khususnya Pandeglang merupakan daerah pertanian. Oleh sebab itu, potensi mordenit dari sekam padi perlu diangkat untuk dimanfaatkan dalam bidang pertanian. Mordenit berguna sebagai bahan baku pemisah ammonium dari perikanan juga, selain itu sekam padi hasil pertanian tidak lagi hanya digunakan sebagai abu gosok melainkan memiliki nilai jual lebih sebagai bahan baku industri silika. Dengan ketersediaan sekam padi yang melimpah, maka pemanfaatan limbah tersebut bisa menjadi nilai ekonomis untuk wilayah pertanian Pandeglang.