



Pengaruh Penambahan Surfaktan Hexadecyltrimethyl-Ammonium (HDTMA) pada Zeolit Alam Terdealuminasi terhadap Kemampuan Mengadsorpsi Fenol

Sriatun^{a*}, Dimas Buntarto^a, Adi Darmawan^a

^a Inorganic Chemistry Laboratory, Chemistry Department, Faculty of Sciences and Mathematics, Diponegoro University, Jalan Prof. Soedarto, Tembalang, Semarang 50275

* Corresponding author: sriatun@live.undip.ac.id

Article Info

Keywords:

HDTMA surfactant, dedealuminated zeolite, phenol adsorption

Kata kunci:
surfaktan HDTMA, zeolit terdealuminasi, adsorpsi fenol

Abstract

Modifications have been made by adding hexadecyltrimethylammonium (HDTMA) surfactants to dedealuminated nature zeolites. The natural zeolite preparation was carried out by soaking using HCl 6 M, and continued with NH_4NO_3 2 M each for 4 hours then calcined at 300 ° C. The natural zeolite from the dealumination is further coupled with HDTMA surfactant at a concentration of 0.125; 0.25; 0.5 and 1.0 M and stirred for 8 hours at a rate of 150 rpm at room temperature. Characterization of dedealuminated zeolites and HDTMA modifications was performed with FTIR spectroscopy. The HDTMA modified zeolite adsorption test was performed on phenol. To determine the amount of phenol adsorbed, the phenol concentrations before and after adsorption were determined by UV-Vis spectroscopy. FTIR spectra showed that natural zeolite after treated with 6 M HCl and NH_4NO_3 2 M underwent dealumination. The existence of dealumination is shown by the band shift from 1045.3 cm^{-1} to 1076.2 cm^{-1} . While the presence of HDTMA in dedealuminated zeolites is indicated by uptake in regions of 2923.9 cm^{-1} and 2854.5 cm^{-1} . From UV-Vis spectroscopic analysis, the maximum adsorbed phenol concentration in ZAD3 (HDTMA concentration 0,5 M) was 239,724 mg/L.

Abstrak

Telah dilakukan modifikasi dengan menambahkan surfaktan heksadesiltrimetilammonium (HDTMA) terhadap zeolit alam terdealuminasi. Dealuminasi zeolit alam dilakukan dengan cara direndam dengan menggunakan HCl 6 M, dan dilanjutkan dengan NH_4NO_3 2 M masing-masing selama 4 jam yang kemudian dikalsinasi pada suhu 300°C. Zeolit alam hasil dealuminasi selanjutnya ditambah dengan surfaktan HDTMA pada konsentrasi 0,125; 0,25; 0,5 dan 1,0 M dan diaduk selama 8 jam dengan kecepatan 150 rpm pada temperatur kamar. Karakterisasi terhadap zeolit terdealuminasi dan modifikasi HDTMA dilakukan dengan spektroskopi FTIR. Uji kemampuan adsorpsi zeolit termodifikasi HDTMA dilakukan terhadap fenol. Untuk mengetahui jumlah fenol yang teradsorpsi, maka konsentrasi fenol sebelum dan sesudah adsorpsi ditentukan dengan spektroskopi UV-Vis. Spektra FTIR menunjukkan bahwa zeolit alam setelah diberi perlakuan dengan HCl 6 M dan NH_4NO_3 2 M mengalami dealuminasi. Adanya dealuminasi ditunjukkan oleh pergeseran pita dari 1045,3 cm^{-1} ke 1076,2 cm^{-1} . Sedangkan adanya HDTMA pada zeolit terdealuminasi ditunjukkan oleh serapan pada daerah 2923,9 cm^{-1} dan 2854,5 cm^{-1} . Dari hasil analisis spektroskopi UV-Vis, diketahui konsentrasi fenol yang teradsorpsi maksimum pada ZAD3 (konsentrasi HDTMA 0,5 M) yaitu sebesar 239,724 mg/L.

1. Pendahuluan

Mineral zeolit merupakan mineral alam yang banyak dijumpai di Indonesia. Salah satu deposit mineral zeolit adalah Bayat, Klaten, Jawa Tengah. Zeolit merupakan aluminasilikat yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi, dengan rongga-rongga di dalam yang terisi oleh ion-ion alkali dan alkali tanah serta molekul air (H_2O) yang dapat bergerak bebas [1]. Zeolit alam mempunyai kadar Si/Al rendah, cenderung bersifat polar, menurut Hamdan [2] tingginya kandungan aluminium dalam kerangka zeolit alam menyebabkan tingginya konsentrasi dari muatan kation penyeimbang kerangka zeolit sehingga strukturnya sangat hidrofilik, tentunya ini kurang sesuai jika zeolit digunakan untuk mengadsorpsi senyawa-senyawa organik yang bersifat hidrofobik seperti fenol. Untuk itu perlu mengurangi kandungan aluminium dengan cara dealuminasi. Salah satu metode dealuminasi adalah dengan menambahkan asam yaitu HCl dan garam amonium yaitu amonium nitrat NH_4NO_3 .

Di samping itu modifikasi zeolit dapat dilakukan dengan mengubah karakter bagian permukaannya yaitu dengan menggunakan surfaktan kationik heksadesiltrimetilamonium (HDTMA). Menurut Bowman [3] zeolit termodifikasi surfaktan HDTMA merupakan adsorben efektif untuk zat organik non polar, anion-anion, dan selektif untuk kation logam. Imron [4] menggunakan surfaktan lauril benzil dimetil amonium klorida sebagai molekul pengarah pada zeolit alam Wonosari untuk adsorpsi fenol.

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh penambahan surfaktan HDTMA⁺ pada zeolit terdealuminasi menggunakan HCl dan garam NH_4NO_3 . Selanjutnya ditentukan pengaruhnya pada kemampuan adsorpsinya untuk senyawa organik yaitu fenol.

2. Metode Penelitian

Penelitian ini meliputi beberapa tahap yaitu:

Tahap I: Penyiapan sampel

Zeolit alam dari daerah Klaten dihancurkan lalu diayak pada ukuran 100 mesh. Zeolit kemudian dicuci dengan aquades dan direndam dalam larutan HF 1% selama 10 menit. Selanjutnya zeolit dicuci dengan aquades hingga pH filtrat sama dengan pH aquades. Zeolit kemudian dipanaskan dalam oven pada suhu $120^\circ C$ selama 4 jam.

Tahap II: Dealuminasi zeolit alam

Dealuminasi zeolit dilakukan dengan cara direndam dengan HCl 6 M, dan dilanjutkan dengan NH_4NO_3 2 M masing-masing selama 4 jam, kemudian dikalsinasi pada suhu $300^\circ C$

Tahap III. Modifikasi Zeolit dengan surfaktan Heksadesiltrimetilamonium (HDTMA⁺)

Modifikasi dengan surfaktan HDTMA pada zeolit hasil dealuminasi mengacu pada metode [3, 5]. Zeolit terdealuminasi ditambah larutan HDTMA pada variasi

konsentrasi 0,125 M (ZAD1), 0,25 M (ZAD2), 0,5 M (ZAD3) dan 1,0 M (ZAD4). Masing-masing campuran diaduk selama 8 jam pada suhu kamar dengan kecepatan 150 rpm. Selanjutnya dicuci dengan akuades, dihasilkan zeolit termodifikasi HDTMA. Kemudian dikeringkan dan dikarakterisasi dengan FTIR untuk menentukan secara kualitatif adsorpsi HDTMA.

Tahap IV: Uji Kemampuan Adsorpsi

Sebanyak 0,5 g zeolit hasil modifikasi di atas dicampurkan dengan 20 mL fenol 1000 mg/L. Campuran selanjutnya diaduk dalam *shaker* dengan kecepatan 150 rpm selama 24 jam. Campuran selanjutnya disaring. Fenol yang tersisa dalam filtrat selanjutnya diukur konsentrasinya dengan spektrofotometer UV.

3. Hasil dan Pembahasan

Karakterisasi zeolit

Zeolit yang digunakan sebagai sampel dalam penelitian ini mempunyai rasio Si/Al relatif rendah. Berdasarkan hasil pengukuran dengan spektroskopi serapan atom diketahui bahwa zeolit alam ini mempunyai rasio Si/Al = 2,852. Tingginya kadar alumina berarti zeolit ini mempunyai kepolaran relatif tinggi atau bersifat hidrofilik.

Mengingat materi yang diserap adalah senyawa aromatik yang mempunyai sifat kepolaran rendah, maka perlu dilakukan pengurangan polaritas terhadap zeolit alam dengan cara mengurangi kandungan aluminiumnya. Dalam penelitian ini, pengurangan kandungan alumina dalam kerangka zeolit dilakukan melalui dealuminasi dengan menggunakan HCl 6 M dan garam NH_4NO_3 2 M.

Pada sampel ini zeolit alam mengalami dua kali proses yaitu dengan HCl 6 M dilanjutkan dengan NH_4NO_3 2 M, sehingga diharapkan alumina yang keluar dari kerangka zeolit lebih banyak. Interaksi tersebut mengakibatkan keluarnya spesies alumina dari zeolit. Ion H^+ yang berasal dari asam mempengaruhi elektron bebas pada atom O untuk membentuk ikatan koordinasi. Dengan demikian pada Al-O akan kekurangan elektron sehingga akan bersifat lebih polar dan tidak sekuat sebelumnya, sehingga Al akan putus dari ikatannya.

Interpretasi spektra FTIR terhadap zeolit alam hasil dealuminasi

Menurut Hamdan [2] semua pita yang disebabkan oleh vibrasi internal dalam kerangka adalah sensitif terhadap struktur dan komposisi kerangka. Dengan berkurangnya kandungan Al pada kerangka zeolit, maka intensitas pita pada daerah $300-1300\text{ cm}^{-1}$ akan berkurang dan bergeser ke frekuensi yang lebih tinggi. Vibrasi kerangka juga sensitif terhadap jenis dan muatan kation penyeimbang muatan.

Perubahan struktur pada zeolit setelah perlakuan dealuminasi dapat diamati dari spektra inframerahnya. Dalam penelitian ini perubahan spektra inframerah dari zeolit hasil dealuminasi dapat dilihat pada gambar 1.

frekuensi bergeser secara signifikan pada bilangan gelombang yang lebih tinggi, yang mengindikasikan bahwa sejumlah besar rantai amina berada pada konformer *gauche*. Rentangan simetris CH_2 pada spektra FTIR juga mengalami sedikit pergeseran. Rentangan simetris CH_2 sedikit sensitif terhadap konformasi rantai daripada rentangan asimetris [6].

Uji Adsorpsi

Uji adsorpsi terhadap fenol dengan menggunakan zeolit dimodifikasi HDTMA diberikan pada Tabel 1. Dari tabel tersebut terlihat bahwa konsentrasi fenol yang diadsorpsi maksimum pada ZAD3 yaitu sebesar 239,724 mg/L

Tabel 1. Hasil uji adsorpsi terhadap fenol

Kode Sampel	Konsentrasi fenol teradsorpsi (mg/L)
ZA	22,955
ZAD	85,327
ZAD1	189,110
ZAD2	207,515
ZAD3	239,724
ZAD4	204,599

Secara umum konsentrasi fenol yang teradsorpsi pada zeolit dealuminasi, meningkat seiring dengan meningkatnya konsentrasi HDTMA tetapi setelah mencapai maksimal pada ZAD3 mengalami penurunan pada ZAD4. Dalam hal ini adsorpsi dipengaruhi oleh sifat adsorben seperti ukuran pori atau sifat permukaan maupun sifat dari adsorbat itu sendiri. Menurut Bowman [3], perlakuan zeolit alam dapat menyebabkan perubahan sifat-sifat permukaan dan akhirnya mempengaruhi sifat adsorpsinya. Pada penelitian ini sifat zeolit alam berubah menjadi bermuatan positif dan hidrofobik, sehingga cenderung bersifat sebagai penukar anion dan mengadsorpsi senyawa nonpolar.

Pada ZAD (terdealuminasi), fenol yang teradsorpsi lebih banyak daripada ZA. Hal ini dikarenakan NH_4^+ yang terdapat pada permukaan zeolit berinteraksi dengan fenol melalui mekanisme ikatan hidrogen antara H yang terdapat pada gugus NH_4^+ dengan O yang terdapat pada gugus fenolat. Disamping hal tersebut, adanya gugus OH yang terdapat pada zeolit dealuminasi juga dapat memberi kontribusi terhadap pembentukan ikatan hidrogen dengan fenol.

4. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat diambil kesimpulan:

1. Dealuminasi zeolit ditunjukkan oleh spektra FTIR pada pergeseran dari $1045,3 \text{ cm}^{-1}$ ke $1076,2 \text{ cm}^{-1}$, sedangkan adanya HDTMA ditunjukkan pada $2923,9 \text{ cm}^{-1}$ dan $2854,5 \text{ cm}^{-1}$.
2. Adsorpsi fenol lebih pada zeolit setelah dealuminasi. Penambahan HDTMA semakin meningkatkan

kemampuan adsorpsinya terhadap fenol. Konsentrasi fenol teradsorpsi maksimum adalah $239,724 \text{ mg/L}$ (ZAD3).

5. Daftar Pustaka

- [1] D.W. Breck, Zeolite molecular sieves: structure, chemistry, and use, Wiley, 1973.
- [2] H. Hamdan, Introduction to Zeolites: Synthesis, Characterization, and Modification, Universiti Teknologi Malaysia, Kuala Lumpur, (1992).
- [3] R.S. Bowman, Applications of surfactant-modified zeolites to environmental remediation, Microporous and Mesoporous Materials, 61 (2003) 43-56.
- [4] A. Imron, Modifikasi pori zeolit alam menggunakan lauril benzil dimetil amonium klorida sebagai molekul pengarah, in: Kimia, Universitas Diponegoro, Semarang, 2003.
- [5] Z. Li, D. Alessi, L. Allen, Influence of quaternary ammonium on sorption of selected metal cations onto clinoptilolite zeolite, Journal of environmental quality, 31 (2002) 1106-1114.
- [6] H. Hongping, F.L. Ray, Z. Jianxi, Infrared study of HDTMA⁺ intercalated montmorillonite, Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 60 (2004) 2853-2859.