



TESIS - SK142502
SINTESIS SODALIT DARI KAOLIN DENGAN
***TREATMENT* ASAM SULFAT**

LUKLU'IM MANTSURO
NRP. 01211250010020

DOSEN PEMBIMBING I
Dra. RATNA EDIATI, M.S., Ph.D.

DOSEN PEMBIMBING II
Prof. Dr. DIDIK PRASETYOKO, M.Sc.

PROGRAM MAGISTER
BIDANG KEAHLIAN KIMIA ANORGANIK
DEPARTEMEN KIMIA
FAKULTAS ILMU ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2018



TESIS - SK142502
SYNTHESIS OF SODALITE FROM KAOLIN
TREATED SULFURIC ACID

LUKLU'IM MANTSURO
NRP. 01211250010020

SUPERVISOR I
Dra. RATNA EDIATI, M.S., Ph.D.

SUPERVISOR II
Prof. Dr. DIDIK PRASETYOKO, M.Sc.

MASTER PROGRAM
DEPARTMENT OF INORGANIC CHEMISTRY
DEPARTMENT OF CHEMISTRY
FACULTY OF SCIENCE
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2018

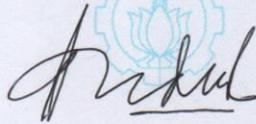
Telah disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Sains (M.Si.)
di
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :

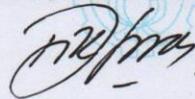
Luklu'im Mantsuro
NRP. 01211250010020

Tanggal Ujian : 24 Januari 2018
Periode Wisuda : Maret 2018

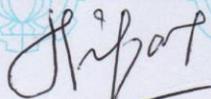
Disetujui oleh :



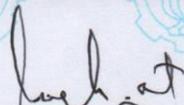
1. **Dra. Ratna Ediati, M.S., Ph.D.** (Pembimbing)
NIP. 19600622 198603 2 002



2. **Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.** (Pembimbing)
NIP. 19710616 199703 1 002



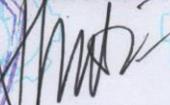
3. **Dr. Afifah Rosyidah, S.Si., M.Si.** (Penguji)
NIP. 19730112 199802 2 001



4. **Drs. Lukman Atmaja, M.Si., Ph.D.** (Penguji)
NIP. 19610816 198903 1 002

Dekan
Fakultas Ilmu Alam




Prof. Dr. rer. nat Agus Rubiyanto, M.Eng.Sc.
NIP. 19650619 198903 1 001

Sintesis Sodalit dari Kaolin dengan *Treatment* Asam Sulfat

Nama mahasiswa : Luklu'im Mantsuro
NRP : 01211250010020
Dosen Pembimbing 1 : Dra. Ratna Ediati, M.S., Ph.D
Dosen Pembimbing 2 : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc

ABSTRAK

Pada penelitian ini, telah dipelajari tentang waktu kristalisasi terhadap sintesis sodalit dari kaolin yang telah di-*treatment* terlebih dahulu. *Treatment* yang dilakukan berupa *leaching* menggunakan asam sulfat 1,5 M pada 80 °C. Sintesis sodalit menggunakan kaolin hasil *leaching*. Komposisi molar untuk sintesis sodalit adalah $3\text{Na}_2\text{O}:1,5\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3:128\text{H}_2\text{O}$ dengan variasi waktu kristalisasi 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36 dan 48 jam pada suhu 100 °C. Padatan yang dihasilkan selanjutnya dikarakterisasi menggunakan spektroskopi infra-merah (FT-IR), difraksi sinar-X (XRD), *Scanning Electron Microscopy–Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX) dan *Atomic Absorption Spectroscopy* (AAS). Berdasarkan hasil karakterisasi XRD dan FT-IR terlihat bahwa tahap awal pembentukan fasa sodalit terjadi pada waktu kristalisasi 3 jam. Sodalit murni terbentuk pada waktu kristalisasi 24, 36 dan 48 jam. Kristalinitas semakin meningkat seiring dengan peningkatan waktu kristalisasi. Kaolin awal, kaolin hasil *leaching* dan sodalit yang terbentuk pada waktu kristalisasi 6, 24 dan 48 jam diaplikasikan untuk adsorpsi ion Pb^{2+} . Sodalit standar digunakan sebagai pembanding. Kapasitas adsorpsi untuk sodalit standar, kaolin awal, kaolin hasil *leaching* dan sodalit hasil sintesis pada waktu kristalisasi 6, 24 dan 48 jam berturut-turut adalah 919,65; 663,89; 666,10; 945,24; 1069,35 dan 1080,76 mg/g.

Kata kunci : Kaolin, sodalit, *leaching*, waktu kristalisasi, adsorpsi ion Pb^{2+}

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

Synthesis of Sodalite from Kaolin Treated Sulfuric Acid

By : Luklu'im Mantsuro
Student Number Identity : 01211250010020
Supervisor 1 : Dra. Ratna Ediati, M.S., Ph.D
Supervisor 2 : Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc

ABSTRACT

In this research, we did study about the effect of crystallization time in the synthesis of sodalite from kaolin using treatment. The treatment has been done by leaching with sulfuric acid 1,5 M at 80 °C. The synthesis of sodalite used kaolin residue from leaching process. Molar ratio of the synthesized sodalite is $3\text{Na}_2\text{O}:1.5\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3:128\text{H}_2\text{O}$ with various of crystallization time 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36 and 48 hours at 100 °C. The final product is characterized by Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR), X-ray Diffraction (XRD) and Scanning Electron Microscopy–Energy Dispersive X-ray (SEM-EDX) and Atomic Absorption Spectroscopy (AAS). The result from XRD and FT-IR showed that the early phase of sodalite formed at crystallization time 3 hours. Pure sodalite was formed at crystallization time 24, 36 and 48 hours. Crystallinity increases along as increasing of crystallization time. Raw kaolin, kaolin residue from leaching process and synthesized sodalite at crystallization time 6, 24 and 48 hours were applied for adsorption of Pb^{2+} ion. Standart sodalite used as comparison. The capacity adsorption from standart sodalite, raw kaolin, kaolin residue from leaching process and synthesized sodalite at crystallization time 6, 24 and 48 hours respectively is 919.65; 663.89; 666.10; 945,24; 1069,35 and 1080,76 mg/g.

Keyword : *Kaolin, sodalite, leaching, crystallization time, adsoption of Pb^{2+}*

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

KATA PENGANTAR

Segala puji dan syukur penulis panjatkan kehadirat Allah SWT, yang telah melimpahkan rahmat Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan tesis dengan judul “Sintesis Sodalit dari Kaolin dengan *Treatment* Asam Sulfat” yang merupakan prasyarat untuk menyelesaikan program Magister (S-2) pada Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam.

Penyusunan tesis ini dapat terselesaikan berkat adanya kerjasama dari berbagai pihak. Oleh karena itu, pada kesempatan ini penulis menyampaikan terima kasih kepada:

1. Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc. selaku Dosen Pembimbing dan ketua Jurusan Kimia FMIPA yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama penyusunan tesis ini.
2. Dra. Ratna Ediati, M.S., Ph.D selaku Dosen Pembimbing dan dosen wali yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama penyusunan tesis ini.
3. Prof. Dr. Mardi Santoso selaku Kaprodi S2 Kimia FMIPA Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.
4. Dr. Djoko Hartanto, M.Si. selaku ketua laboratorium Kimia Material dan Energi.
5. Seluruh dosen dan karyawan Jurusan Kimia FMIPA ITS atas segala dedikasinya.
6. Keluarga terutama ayah dan suami yang selalu memberi dukungan dan doa, serta adik-adik yang selalu memberi semangat.
7. Teman-teman Prodi Pascasarjana Kimia yang telah memberikan masukan dalam penyelesaian tesis ini.

Penulis menyadari bahwa tesis ini tidak lepas dari kekurangan. Oleh karena itu, penulis terbuka saran dan kritik yang membangun. Semoga tesis ini memberikan manfaat bagi penulis dan pembaca.

Surabaya, Januari 2018

Penulis

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
LEMBAR PENGESAHAN	iii
ABSTRAK	v
ABSTRACT	vii
KATA PENGANTAR.....	ix
DAFTAR ISI	xi
DAFTAR GAMBAR.....	xv
DAFTAR TABEL	xvii
DAFTAR LAMPIRAN	xix
BAB 1 PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	3
1.3 Tujuan Penelitian	4
1.4 Batasan Penelitian	4
1.5 Manfaat Penelitian	4
BAB II KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI.....	5
2.1 Kaolin.....	5
2.1.1 <i>Leaching</i> Kaolin	7
2.2 Zeolit	8
2.2.1 Sodalit	13
2.2.2 Sintesis Sodalit	14
2.2.2.1 Metode Hidrotermal	17
2.2.2.2 Pengaruh Waktu Hidrotermal.....	18
2.2.3 Aplikasi Sodalit	22

2.3	Tinjauan Instrumentasi	22
2.3.1	<i>X-Ray Diffraction (XRD)</i>	22
2.3.2	<i>Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)</i>	28
2.3.3	Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX).....	31
2.3.4	<i>Atomic Absorption Spectrometer (AAS)</i>	33
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....		35
3.1	Alat dan Bahan	35
3.1.1	Alat	35
3.1.2	Bahan	35
3.2.	Prosedur Penelitian	36
3.2.1	Proses <i>Leaching</i> Kaolin.....	36
3.2.2	Sintesis Sodalit.....	36
3.2.3	Aplikasi Sodalit untuk Adsorpsi Pb ²⁺	36
3.3	Instrumentasi	37
3.3.1	Difraksi Sinar-X	37
3.3.2	Spektroskopi Inframerah (FTIR).....	38
3.3.3	Scanning Electron Microscopy - Energy Dispersive (SEM – EDX).....	38
3.3.4	<i>Atomic Absorption Spectrometer (AAS)</i>	38
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....		39
4.1	Karakterisasi Kaolin dan Kaolin Hasil <i>Leaching</i>	39
4.2.	Sintesis Sodalit	44
4.3	Karakterisasi Sodalit.....	44
4.3.1	Hasil Karakterisasi XRD	44
4.3.2	Spektroskopi Inframerah (FTIR).....	49

4.3.3 SEM – EDX	53
4.3.4 Aplikasi Sodalit untuk Adsorpsi Ion Pb ²⁺	56
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	61
4.1 Kesimpulan	61
4.2. Saran	62
DAFTAR PUSTAKA	63
LAMPIRAN	69
BIOGRAFI	83

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Struktur kaolinit	6
Gambar 2.2 <i>Primer building unit</i> (PBU) pada zeolit, (a) tetrahedral TO ₄ ; (b) tetrahedral TO ₄ yang terhubung dengan Oksigen.....	10
Gambar 2.3 <i>Secunder building unit</i> (SBU) pada zeolit	10
Gambar 2.4 Unit pembangun rongga (<i>cage</i>) zeolit.....	11
Gambar 2.5 (a) cincin-6 mempunyai 2 atom Al dan 4 atom Si, (b) unit sodalit, (c) struktur kerangka sodalit.....	13
Gambar 2.6 Diagram komposisi reaksi sodalit	14
Gambar 2.7 Diagram interaksi kation Na dengan molekul air	16
Gambar 2.8 Difraksi sinar-X oleh kisi kristal menurut Hukum Bragg.....	24
Gambar 2.9 Difraktogram kaolin awal dan kaolin <i>treatment</i>	26
Gambar 2.10 (A) XRD sampel sodalit, (B) Puncak sodalit pada difraksi 2 1 1	27
Gambar 2.11 Spektra FTIR kaolin murni dan kaolin <i>treatment</i>	29
Gambar 2.12 Spektra FTIR pada sampel dengan variasi waktu hidrotermal: (a) 0 jam (b) 1 jam, (c) 2 jam, (d) 3 jam	30
Gambar 2.13 SEM kaolin murni dan kaolin <i>treatment</i>	32
Gambar 2.14 Sodalit: S1 (a), (b), (c); (S2) (d); S4 (e) dan (f)	33
Gambar 4.1 Pola difraktogram sinar-X, (A) kaolin, (B) kaolin hasil <i>leaching</i>	40
Gambar 4.2 Spektra FTIR pada (A) kaolin, (B) kaolin hasil <i>leaching</i>	41
Gambar 4.3 Hasil karakterisasi SEM pada kaolin dan kaolin hasil <i>leaching</i>	42
Gambar 4.4 Spektrum EDX kaolin dan kaolin <i>leaching</i>	43
Gambar 4.5 Pola difraksi sinar-X dengan variasi waktu kristalisasi 1-48 jam (H-1 sampai H-48); S-Standar (sodalit standar)	46
Gambar 4.6 Grafik waktu kristalisasi terhadap kristalinitas (%).....	49

Gambar 4.7 Spektra FTIR dari padatan hasil sintesis dengan variasi waktu kristalisasi 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36, 48 jam (H-1 sampai H-48); kaolin hasil <i>leaching</i> dan S-standar.....	51
Gambar 4.8 Morfologi dari sampel S-standar (sodalit standar), H-6, H-24, H-48 (waktu kristalisasi 6, 24, 48 jam).	54
Gambar 4.9 Spektrum EDX sampel H-6, H-24, H-48 dan S-Standar	55
Gambar 4.10 Jumlah Pb yang teradsorp pada sampel S-standar, Kaolin awal, Kaolin Leaching, H-6, H-24, dan H-48.....	57
Gambar 4.11 Morfologi dari sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben	59
Gambar 4.12 Spektrum EDX sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben	60

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 <i>Leaching</i> Kaolin.....	9
Tabel 2.2 Sifat fisika dan kimia dari zeolit	12
Tabel 2.3 Sintesis sodalit dipengaruhi oleh material yang digunakan, komposisi rasio dan waktu hidrotermal	21
Tabel 2.4 Aplikasi Sodalit.....	23
Tabel 2.5 Sintesis sodalit nanopartikel	27
Tabel 2.6 Bilangan gelombang spektra FTIR dari kaolin.....	30
Tabel 2.7 Hasil SEM-EDX pada sampel sodalit.....	33
Tabel 4.1 Hasil EDX kaolin dan kaolin <i>leaching</i>	43
Tabel 4.2 Fasa dan produk yang terbentuk	47
Tabel 4.3 Kristalinitas dari padatan hasil sintesis sodalit	48
Tabel 4.4 Bilangan gelombang (cm-1) spektra FTIR dari kaolin dan padatan hasil sintesis dengan waktu kristalisasi yang berbeda	52
Tabel 4.5 Hasil EDX produk hasil sintesis	56
Tabel 4.6 Hasil EDX sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben.....	60

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A (Diagram Alir Penelitian)	69
Lampiran B (Perhitungan)	72
Lampiran C (Pembuatan Kurva Kalibrasi Ion Pb^{2+})	74
Lampiran D (Perhitungan Kapasitas Adsorpsi)	77
Lampiran E (Perhitungan Kristalinitas)	81

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Zeolit merupakan material kristal aluminosilikat berpori yang mempunyai pori - pori molekul dengan ukuran (5-12 Å atau 0,5-1,2 nm) dengan rumus yaitu $M_{2/n}O \cdot Al_2O_3 \cdot ySiO_2 \cdot wH_2O$, dimana M merupakan kation logam, $y = 2 - 200$, n merupakan valensi kation, w merupakan komposisi air yang terkandung dalam zeolit. Struktur kerangka zeolit tersusun dari tetrahedra $[SiO_4]^{4-}$ dan $[AlO_4]^{5-}$. Ion oksigen pada struktur kerangka zeolit sebagai penghubung antara struktur tetrahedra SiO_4 dan AlO_4 . Pada kerangka zeolit, masing-masing tetrahedra AlO_4 membawa muatan negatif yang diseimbangkan oleh kation. Kation dapat berpindah melalui pertukaran ion (Flanigen dkk., 2010). Beberapa Jenis zeolit yang umum digunakan yaitu zeolit X, zeolit A, zeolit Beta, ZSM-5, analsim dan Sodalit.

Sodalit merupakan zeolit berukuran pori kecil yaitu 2,8 Å dengan struktur kerangka yang terdiri dari 6 cincin. Struktur kerangka sodalit berbentuk kubik yang tersusun dari β -cage. Setiap β -cage terdiri dari 24 atom T ($T=Si^{4+}$ atau Al^{3+}) masing-masing unit tersusun dari tetrahedra SiO_4 dan AlO_4 . Setiap β -cage dengan β -cage yang lain dihubungkan oleh cincin sederhana T4 [S_4R_s] (Felsche dkk., 1986).

Sintesis zeolit menggunakan material dari bahan komersil sebagai sumber silika dan alumina yaitu natrium aluminat, ludox dan natrium metasilikat (Hiyoshi, 2012; Yao dkk., 2008). Penggunaan sumber silika dan alumina dari bahan komersil dapat diganti dengan material dari alam atau limbah yang melimpah. Material tersebut diantaranya adalah abu layang batubara (Rayalu dkk., 2005), abu sekam padi (Prasetyoko dkk., 2006), abu layang tebu (Purnomo dkk., 2012), illit (Mezni dkk., 2011), bentonit (Musyoka dkk., 2014) dan kaolin (Rios dkk., 2009).

Kaolin merupakan salah satu material yang dapat digunakan untuk sintesis zeolit. Kaolin adalah bahan tambang berupa lempung (clay) berwarna putih dan

mineral utamanya adalah kaolinit. Kaolinit berasal dari dekomposisi feldspar yang bercampur dengan oksida-oksida aluminium, silikon, kalsium, magnesium, kalium, natrium, besi, dan lain-lain. Kaolin banyak digunakan dalam beberapa bidang diantaranya yaitu pada bidang industri keramik, pengolahan kertas, pertanian, pengolahan karet, industri plastik (Grim, 1968).

Kaolin yang digunakan pada bidang industry, masih mengandung zat – zat pengotor antara lain besi dan titanium. Zat pengotor tersebut mempengaruhi kemurnian pada kaolin. Selama proses hidrotermal, besi oksida dapat menurunkan konsentrasi kaolin yang menyebabkan kaolin tidak dapat dipakai untuk aplikasi industry. Oleh karena itu, beberapa metode kimia telah diterapkan agar kontaminan pada kaolin dapat berkurang (Lee dkk, 2007). Pada proses penghilangan kontaminan yang sering digunakan antara lain pemisahan magnetik, froth flotation, flokulasi selektif, dan pemisahan ukuran dengan hidrosiklon dan *leaching* (He dkk, 2011).

Diantara metode tersebut, *leaching* merupakan cara paling efektif, yaitu menggunakan sulfur dioksida, sodium ditionit dan asam organik komersial (Taran 2015). Banyak penelitian telah mengindikasikan bahwa kaolinit lebih larut pada asam sulfat daripada asam hidroklorik, diantaranya telah dilaporkan oleh Panda (2010). Kaolinit $[Al_2Si_2O_5(OH)_4]$ yang terkandung pada kaolin digunakan sebagai material utama untuk sintesis zeolit sebagai sumber SiO_2 dan Al_2O_3 . Beberapa jenis zeolit yang telah dihasilkan dari material kaolin diantaranya yaitu zeolit LTA (Wang dkk., 2014), zeolit X (Kovo, 2012), zeolit Na-P (Alkan dkk., 2005), kankrinit (Lin dkk., 2004), zeolit Na-Y (Sun dkk., 2011), ZSM-5 (Holmes dkk., 2011), zeolit SAPOs (Wang dkk., 2010), zeolit beta (Zang dkk., 2007), analsim (Atta dkk., 2012) dan sodalit (Huang dkk., 2011).

Sintesis sodalit dari bahan alam diantaranya dilaporkan oleh Musyoka dkk. (2014) menggunakan bentonit, clay merah dan clay putih difusi selama 1,5 jam pada suhu 550 °C. Penggunaan material bentonit dan clay merah menghasilkan campuran antara zeolit X dan sodalit sedangkan pada clay putih menghasilkan sodalit. Mezni dkk. (2011) menggunakan material illit dan menggunakan metode fusi dan metode secara langsung. Rasio komposisi pada kedua metode tersebut sama yaitu $Na_2O/Al_2O_3 = 10,39$; $H_2O/Na_2O = 30,78$; $SiO_2/Al_2O_3 = 3,43$. Metode

fusi dan dilanjutkan dengan variasi waktu hidrotermal selama 1, 2, 4, 6, 8, 24 jam pada suhu 60, 90, 110 °C. Metode secara langsung juga dilakukan dengan waktu hidrotermal selama 6, 24, 72, 96 jam pada suhu 90 °C. Produk yang dihasilkan dari metode fusi yaitu sodalit dan sedikit campuran zeolit X pada suhu 110 °C dan waktu hidrotermal 24 jam. Pada metode langsung didapatkan sodalit dan sedikit campuran illit pada waktu hidrotermal 96 jam.

Berdasarkan uraian tersebut menunjukkan bahwa sodalit dapat disintesis dari bahan alam yaitu clay, illit, bentonit dan kaolin serta dari bahan limbah yaitu abu layang batubara. Adapun kekurangan sintesis sodalit dari bahan abu layang batubara, clay, illit, bentonit adalah perlu dilakukan fusi terlebih untuk mengaktivasi silika dan alumina pada bahan-bahan tersebut. Sekalipun demikian, produk yang dihasilkan bukan sodalit murni. Metode fusi tersebut tentunya memerlukan energi yang besar sehingga biaya yang diperlukan akan bertambah. Adapun sintesis sodalit dari bahan tersebut, produk yang dihasilkan bukan sodalit murni serta waktu hidrotermal yang diperlukan lama.

Oleh karena itu, pada penelitian ini sintesis sodalit menggunakan bahan kaolin yang di-*leaching* dengan asam sulfat agar kemurnian dari kaolin meningkat. Adapun dengan menggunakan kaolin tanpa *leaching* memiliki kelemahan yaitu waktu hidrotermal yang diperlukan lama. Maka dari itu, perlu dilakukan sintesis sodalit dari bahan kaolin yang di-*leaching* dengan melakukan variasi waktu kristalisasi agar didapatkan sodalit murni pada waktu kristalisasi yang lebih cepat.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan pada metode sintesis sodalit dari kaolin yang telah dilaporkan beberapa peneliti di atas, menunjukkan bahwa sodalit dapat disintesis menggunakan kaolin sebagai sumber Si dan Al. Namun, metode sintesis sodalit dari kaolin yang tanpa *leaching* menghasilkan sodalit yang kurang murni. Adapun sodalit murni yang didapatkan melalui metode tersebut membutuhkan waktu kristalisasi yang lama. Oleh Karena itu, pada penelitian ini digunakan kaolin yang sudah di-*leaching* dengan asam sulfat dan dilakukan variasi waktu kristalisasi

selama 1 sampai 48 jam sehingga diharapkan waktu kristalisasi yang diperlukan untuk sintesis sodalit menjadi lebih cepat.

1.3 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis sodalit murni dari kaolin yang ditreatment dengan asam sulfat dan menguji aktivitasnya sebagai adsorben untuk ion Pb^{2+} .

1.4 Batasan Penelitian

Sintesis sodalit pada penelitian ini menggunakan kaolin yang di-*leaching* dengan asam sulfat 1,5 M. Kristalisasi dilakukan dengan variasi waktu selama 1 sampai 48 jam. Padatan dikarakterisasi dengan teknik XRD, FTIR dan SEM-EDX.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini yaitu untuk mengetahui metode sintesis sodalit dari kaolin yang sudah di-*leaching*, sehingga diharapkan biaya yang diperlukan lebih terjangkau dan sodalit yang didapatkan lebih murni serta lebih optimal dalam pemanfaatannya.

BAB II

KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

2.1 Kaolin

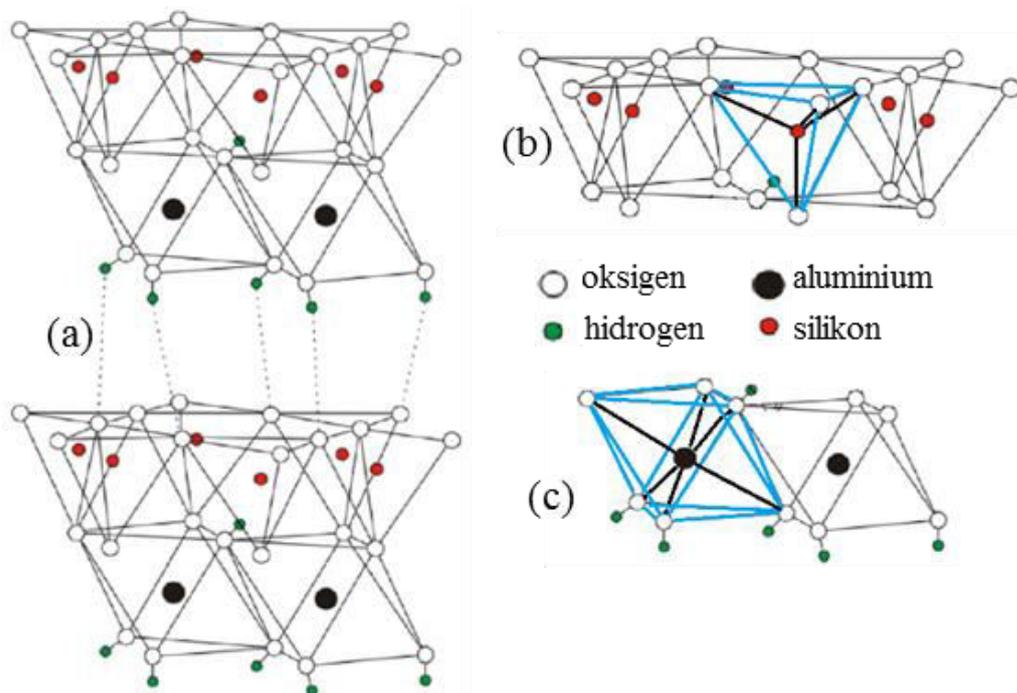
Kaolin merupakan batuan yang tersusun dari material lempung dengan kandungan besi yang rendah dan umumnya berwarna putih atau agak keputihan. Kata “kaolin” berasal dari bahasa Cina, “Cau-ling” yang berarti “*Hight Mountains*” merupakan nama sebuah desa dekat King-Te-Ching di Kiangsi, tempat pertama kali kaolin ditambang sekitar abad ke-7. Oleh karena itu kaolin disebut “lempung Cina”. Mineral utamanya adalah kaolinit (85-95%). Kaolin biasanya mengandung *quartz* dan mika dan mengandung sedikit feldspar, illit, montmorillonit, ilmenit, hematit, bauksit, zirkon, rutil, kianit, grafit, hallosit (Grim, 1968).

Kaolinit merupakan komponen utama pada kaolin, berbentuk kecil, tipis, pseudoheksagonal, lapisan fleksibel dari kristal triklinik dengan diameter 0,2-12 μm , densitas 2,1-2,6 g/cm^3 . Kapasitas penukar kation pada kaolinit lebih rendah dari montmorillonit yaitu sekitar 2-100 meq/100 g, tergantung pada ukuran partikelnya tetapi kecepatan reaksi penukar kation lebih cepat. Kaolin mengadsorpsi molekul kecil seperti lesitin, quinolin, paraquat, protein, poliakrilonitril, bakteri. Material yang teradsorpsi dapat dengan mudah berpindah karena adsorpsi hanya terjadi pada bagian permukaan saja. Tidak seperti montmorillonit dimana molekul yang teradsorpsi terikat diantara lapisan. Selama proses pemanasan, kaolinit akan mulai kehilangan air pada suhu 400 °C dan proses dehidrasi terjadi pada suhu 525 °C. Dehidrasi tergantung pada ukuran partikel dan kristalinitas dari kaolin (Grim, 1968).

Kaolinit terbentuk dari dekomposisi feldspar, granit, dan alumina silikat. Proses pembentukan kaolin disebut kaolinisasi. Pembentukan kaolin terjadi melalui tiga cara yaitu (i) pelapukan dan transformasi batuan karena pengaruh iklim (tipe Zettlitz), (ii) transformasi batuan karena pengaruh hidrotermal (tipe Cornwall) dan (iii) pembentukan karena pengaruh iklim dan hidrotermal (tipe campuran). Tipe mineral yang terbentuk selama proses pelapukan batuan

mengandung alumina dan silika dipengaruhi oleh iklim, rasio alumina/silika dan pH. Kondisi yang memungkinkan untuk pembentukan kaolinit melalui pelarutan dengan ion Ca^{2+} , Mg^{2+} , dan K^+ serta adanya ion H^+ (pH 4-5). Penggolongan kaolin berdasarkan umur geologi batuan yaitu precambrian (Ukraina, Spanyol, republic Slovakia), postcambrian (Inggris, pegunungan Ural, Rusia), palaeovolkanit (German), neovolkanit (pegunungan Tokaj, Hungaria). Pembentukan kaolinit dapat juga dikategorikan berdasarkan apakah terbentuknya menetap di suatu tempat atau berpindah: (i) *primary*: pembentukan kaolinit dipengaruhi oleh iklim, (ii) *secondary*: perpindahan dikarenakan perbedaan air, angin, tekanan (Grim, 1968).

Struktur kaolinit ditunjukkan pada Gambar 2.1. Kaolinit tersusun oleh silika tetrahedral yang terhubung dengan alumina oktahedral. Struktur tersebut tersusun secara teratur sehingga silika tetrahedral berdekatan dengan alumina oktahedral membentuk lapisan. Pada lapisan oktahedral dan tetrahedral, 2-3 atom oksigen berikatan dengan silika dan alumina, kemudian oksigen digantikan oleh OH. Rumus molekul mineral kaolinit (kaolinit, nakrit, dikrit) adalah $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$.



Gambar 2.1 Struktur kaolinit (Cheng dkk., 2012).

Lapisan kaolinit hanya terbentuk oleh lapisan silika tetrahedral dan lapisan alumina oktahedral, yang tidak melibatkan substitusi isomorfis. Hidroksil pada lapisan oktahedral mengikat oksigen pada lapisan tetrahedral membentuk lapisan yang berurutan pada kristal kaolinit. Muatan struktur pada kristal tidak ada, dan tidak ada molekul atau kation pada lapisan permukaan luar. Luas permukaan kaolinit tereduksi ke luas permukaan eksternal dan luas permukaan tepi. Dua jenis luas permukaan eksternal pada kaolinit yaitu: luas permukaan yang satu berkaitan dengan lapisan luar tetrahedral dan lapisan yang lain berkaitan dengan lapisan luar oktahedral. Reaktivitas dari lapisan luar oktahedral berkaitan dengan adanya gugus hidroksil, yang mana: i) dapat meningkatkan pH yang tergantung pada muatan permukaan melalui reaksi protonasi atau deprotonasi, ii) dapat bereaksi secara spesifik dengan molekul lain (Grim, 1968).

Kaolin diambil melalui proses penambangan. Metode yang digunakan pada proses penambangan ada dua yaitu proses flotasi (pengeringan) dan proses pembasahan. Pada proses pengeringan, kaolin dikeringkan dan dihaluskan sehingga didapatkan serbuk (padatan) kaolin. Pada proses pembasahan, kaolin dicampur dengan air, diaduk secara terus menerus dan didiamkan hingga didapatkan padatan dan air terpisah (Grim, 1968).

Kaolin dapat dimanfaatkan dalam berbagai bidang diantaranya dalam bidang industri, bidang pengobatan, bidang kosmetik. Pada bidang industri, pemanfaatan kaolin diantaranya digunakan untuk pelapisan pada kertas, filler untuk produksi cat, kertas, karet, sebagai komponen fiber gelas, dan sebagai katalis pada penambangan minyak dan gas. Pada bidang pengobatan, pemanfaatan kaolin diantaranya digunakan sebagai adsorben untuk mengadsorp lipid dan protein serta virus dan bakteri (Grim, 1968).

2.1.1 Leaching Kaolin

Kaolin yang merupakan bahan alam tentu banyak mengandung impurities, seperti quartz, illit, feldspard, besi (dalam bentuk oksida maupun hidroksida), titanium, dan magnesium. Adanya impuriti seperti besi pada kaolin dapat menurunkan kualitas kaolin (Tuncuk dkk., 2013). Kualitas kaolin tersebut

tentunya berpengaruh terhadap aplikasinya. Oleh sebab itu, untuk meningkatkan kualitas kaolin tersebut maka dibutuhkan metode untuk mereduksi besi dari kaolin. Metode tersebut antara lain metode pemisahan dengan magnet, flotasi, flokulasi selektif, dan *leaching*. Diantara metode tersebut, *leaching* merupakan cara paling efektif, menggunakan sulfur dioksida, sodium dithionite dan asam organik komersial (Taran 2015). Beberapa penelitian tentang *leaching* kaolin dapat dilihat pada tabel 2.1.

2.2 Zeolit

Zeolit berasal dari kata Yunani yang berarti “batu mendidih”, karena kemampuan dari material tersebut untuk mengabsorb air dan melepaskannya saat pemanasan. Zeolit merupakan kristal aluminosilikat yang mempunyai pori dan saluran molekul tiga dimensi. Pada umumnya zeolit mengandung silika, alumina, oksigen dan kation pada struktur kerangkanya. Rumus umum zeolit dinyatakan sebagai berikut:



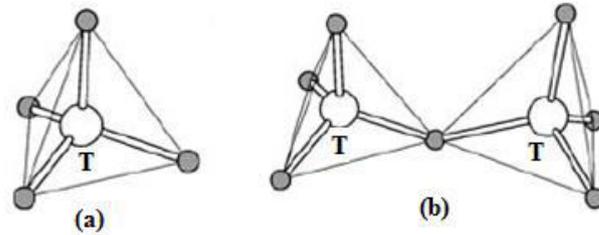
dimana M merupakan kation logam dengan valensi n dan pada umumnya merupakan kation golongan I dan II A atau logam lain yang dapat menyeimbangkan muatan negatif pada Al di dalam kerangka struktur zeolit. Ukuran pori zeolit 5-12 Å atau 0,5-1,2 nm (Xu dkk., 2007).

Struktur zeolit terdiri dari dua jenis yaitu *primer building unit* (PBU), *secunder building unit* (SBU), unit pembangun rongga (*cage*) atau unit pembangun polihedra. *Primer building unit* (PBU) adalah tetrahedral TO_4 . T merupakan Si atau Al yang masing-masing T terkoordinasi dengan 4 atom oksigen, dengan masing-masing atom oksigen berikatan dengan dua atom T (Gambar 2.2). *Secunder building unit* (SBU) pada kerangka zeolit terbentuk dari gabungan beberapa *primer building unit* (PBU). *Secunder building unit* (SBU) pada struktur zeolit terdiri dari cincin 3, 4, 5, dan 6 (n -MR) (Gambar 2.3). Masing-masing n -MR terdiri dari n merupakan atom T yang terhubung dengan cincin melalui ion O dan biasanya mempunyai atom $2n$; jika 6-MR maka total atomnya sebanyak 12 atom. Struktur tersebut teratur membentuk cincin besar yang menggambarkan molekul pori biasanya 8-, 10- dan 12-MR.

Tabel 2.1 *Leaching* Kaolin

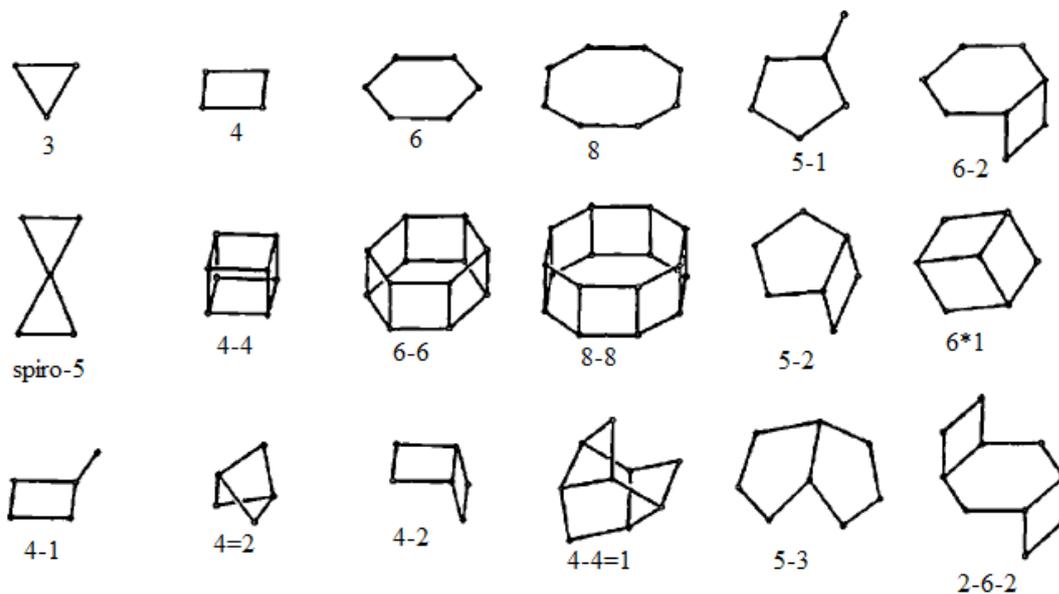
Jumlah Fe₂O₃ dalam kaolin	Agen <i>leaching</i>	Faktor yang berpengaruh	<i>Yield</i> besi yang hilang	Referensi
1,08 %	H ₂ SO ₄ , sukrosa	Suhu, pH, durasi <i>leaching</i> , kecepatan pengadukan	98%	Veglio dkk. (1993)
0,84%	H ₂ SO ₄ , asam oksalat, asam asorbat	Suhu, kecepatan pengadukan, konsentrasi asam dan mineral	43-45%	Veglio dkk. (1996)
0,03%	H ₂ SO ₄ dan asam oksalat	Suhu, konsentrasi asam, durasi <i>leaching</i>	35-45%	Veglio dkk. (1998)
>4%	Asam oksalat	Konsentrasi asam, suhu, durasi <i>leaching</i>	45%	Calderon dkk. (2005)
2,4%	Asam oksalat, asam sitrat, asam sulfat, hidrogen peroksida	Konsentrasi asam sulfat, suhu, durasi <i>leaching</i> , dan reduktor	26,3%	Tuncuk dkk. (2013)
0,18%	Asam oksalat	Konsentrasi asam, pH, suhu, durasi <i>leaching</i>	20%	Lee dkk. (2006)

Zeolit yang mengandung 8-, 10- dan 12-MR disebut sebagai zeolit yang berukuran pori kecil, sedang dan besar. Unit pembangun sekunder mengandung 16 tetrahedra yang berikatan dengan atom T (Xu dkk., 2007).

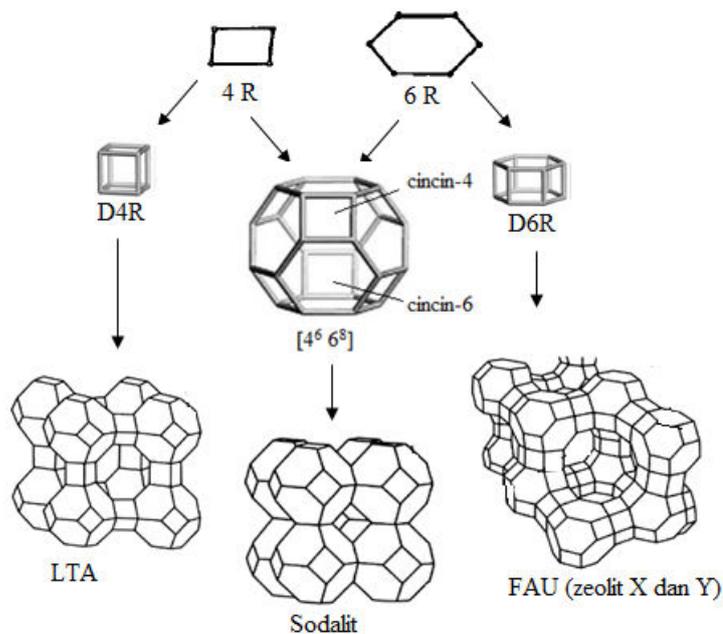


Gambar. 2.2 Primer building unit (PBU) pada zeolit, (a) tetrahedral TO_4 ; (b) tetrahedral TO_4 yang terhubung dengan Oksigen (Xu dkk, 2007).

Unit pembangun rongga (*cage*) atau unit pembangun polihedra yaitu jumlah cincin pada bagian permukaan. Contohnya sodalit oktahedron (unit sodalit) pada bagian permukaan mempunyai enam cincin-4 dan delapan cincin-6, dituliskan sebagai *cage* $[4^6 6^8]$. Unit pembangun rongga (*cage*) yang sama akan menghasilkan tipe struktur kerangka yang berbeda karena dihubungkan oleh cincin yang berbeda. Contohnya pada rongga SOD (sodalit), struktur sodalit terbentuk ketika β -*cage* terhubung dengan cincin-4 tunggal; struktur LTA terbentuk ketika β -*cage* terhubung dengan cincin-4 rangkap; FAU (faujasit) terbentuk ketika β -*cage* terhubung dengan cincin-6 rangkap (Gambar 2.4) (Xu dkk., 2007).



Gambar. 2.3 Secunder building unit (SBU) pada zeolit (Xu dkk, 2007).



Gambar. 2.4 Unit pembangun rongga (*cage*) zeolit (Smart dan Moore, 1993).

Sifat zeolit tergantung pada struktur kristal dan tipe saluran (rongga) di dalam kerangka zeolit seperti ukuran pori dan bentuk pori. Karena sifat tersebut zeolit dapat diaplikasikan sebagai penukar kation, adsorben dan katalis. Zeolit konvensional terdiri dari kerangka silika yang tersubstitusi dengan Al (atau logam) yang bermuatan negatif pada kerangkanya, dengan kation (Na atau logam alkali dan alkali tanah) dalam struktur porinya. Bagian ini berperan penting sebagai penukar ion, dimana ion logam pada struktur pori dapat ditukar dengan kation lain. Zeolit yang memiliki pori kecil biasanya digunakan sebagai adsorben. (Puppe, 1999).

Jumlah dan letak Al pada kerangka zeolit mempengaruhi sifat dari produk yang dihasilkan. Rasio Si/Al pada yang rendah yaitu 1, menunjukkan rendahnya tetrahedral $[\text{AlO}_4]^{-1}$ sehingga tidak dapat diletakkan berdekatan satu dengan yang lain karena muatan negatif saling menolak (Breck, 1974). Muatan negatif Al pada zeolit menyebabkan zeolit memiliki kemampuan sebagai penukar kation dan sebagai katalis. Kekuatan hidrofilik dan hidrofobik juga tergantung dari jumlah Al. Adsorpsi molekul polar dan non polar pada zeolit juga dipengaruhi oleh jumlah Al. Hidrofilik dan sifatnya sebagai penukar kation dimanfaatkan untuk

pemurnian air serta adsorpsi molekul polar dan non polar digunakan untuk pemurnian campuran larutan polar dan non polar (Bukhari dkk., 2014).

Tabel 2.2 Sifat fisika dan kimia dari zeolit (Byrappa dan Yoshimura, 2001)

Sifat	Keterangan
Ukuran pori	~5-15Å
Bentuk pori	<i>Circular, elliptical</i>
Dimensi sistem pori	1-D, 2-D, 3-D
Konfigurasi pori	Saluran, rongga
Sifat permukaan	Hidrofilik, hidrofobik (kadar silika banyak)
Volume	Kurang dari ~50%
Komposisi struktur kerangka oksida	Si, Al, P, Ga, Ge, B, Be, Zn, Ti, Fe, Co, Cr, V, Mg, Mn

Mineral zeolit di alam dapat terbentuk secara alami karena pengaruh dari kondisi sistem geologi dan suhu. Tetapi penyebarannya tidak merata sehingga perlu dilakukan sintesis zeolit. Sintesis zeolit dipengaruhi oleh beberapa faktor diantaranya yaitu komposisi reaksi, suhu dan waktu kristalisasi. Beberapa faktor tersebut berperan penting pada proses kristalisasi.

Zeolit diklasifikasikan berdasarkan komposisi rasio Si/Al yaitu zeolit dengan komposisi rasio Si/Al rendah ($Si/Al < 5$). Zeolit jenis ini memiliki kemampuan sebagai penukar kation, adsorben. Zeolit jenis ini yaitu zeolit A, sodalit, zeolit X. Zeolit dengan komposisi rasio Si/Al sedang ($Si/Al = 5 - 10$). Zeolit jenis ini yaitu mordenit. Zeolit dengan komposisi rasio Si/Al tinggi ($Si/Al > 10$). Zeolit jenis ini yaitu ZSM-5 (Wladinger dkk., 1967).

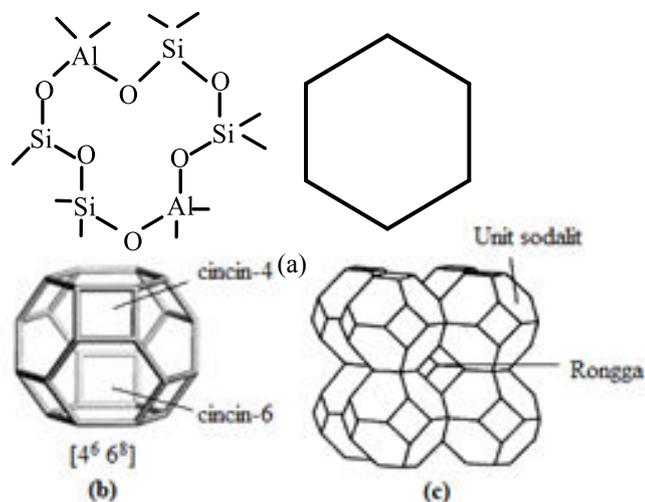
Faktor-faktor yang mempengaruhi kristalisasi zeolit menurut Szotzak, 1989 adalah sebagai berikut:

1. Komposisi : konsentrasi $[OH^-]$; kation (anorganik, organik); H_2O
2. Waktu kristalisasi : berapa jam, hari, minggu tergantung dari jenis zeolit yang disintesis
3. Suhu kristalisasi : *ambient* (25-60 °C); suhu rendah (90-120 °C); suhu tinggi (120- 200 °C); suhu paling tinggi (> 250 °C)
4. Faktor yang lain : stirer (pelarutan), aging (pemeraman)

2.2.1 Sodalit

Sodalit merupakan kristal mikropori yang mempunyai ukuran pori 2,8Å dengan komposisi secara umum adalah $\text{Na}_8 [\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}](\text{X})_2$, dimana X adalah anion *monovalent*. Tipe material ini adalah $(\text{Na}_8^+\text{Cl}) [\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}]$ -SOD, kubik *P*-43n, $a = 8.870 \text{ \AA}$. Ion Na^+ dan Cl^- di dalam strukturnya dapat ditukar. Sodalit tergolong zeolit jenis tektosilikat. Struktur sodalit terdiri dari unit pembangun primer (PBU) yang terdiri dari atom Si dan Al di bagian pusat dan empat atom oksigen. Tiap-tiap atom oksigen terhubung melalui tetrahedral. Tetrahedral menyusun struktur kerangka sodalit sehingga terbentuk polihedra (rongga- β) menjadi unit sel kubik. Tiap-tiap unit sel kristal sodalit terdiri dari 12 tetrahedral. Tipe struktur kerangka sodalit terdiri dari kubus berpusat badan yang tersusun dari β atau rongga sodalit yang tergabung pada cincin-4 tunggal dan cincin-6 tunggal (Xu, 2007).

Kerangka sodalit dapat digambarkan sebagai kubus primitif yang tersusun dari rongga- β yang tergabung dengan cincin-4, membentuk rongga- β di bagian pusatnya (Xu, 2007). Rongga tertutup oleh delapan unit sodalit (Gambar 2.5). Pada struktur tiga dimensi, tetrahedral Si dan Al terletak pada perpotongan empat garis karena jembatan oksigen terbentuk melalui ikatan antara puncak tetrahedron yang saling terhubung. Sodalit memiliki struktur simetri yang bagus dan gabungan rongganya dapat membentuk saluran atau pori, yang tersusun tiga kristal kubik, saluran masuk ke porinya melalui cincin-4 (Smart dan Moore, 1993).



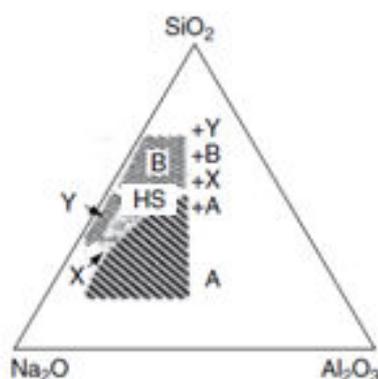
Gambar 2.5 (a) cincin-6 mempunyai 2 atom Al dan 4 atom Si, (b) unit sodalit, (c) struktur kerangka sodalit (Xu, 2007).

Sodalit merupakan material yang dapat diaplikasikan sebagai material pengolahan limbah, penyimpan hidrogen, pemisahan hidrogen, support katalis, material optik (Jiang dkk., 2012). Struktur elektronik sodalit mempunyai karakteristik yang bersifat optik. Hal tersebut tergantung pada komposisi struktur kerangka serta lebar pita optik ~ 8 eV atau lebih rendah dari 8 eV yang mendekati daerah infra merah. Pita absorpsi lebih rendah dari 8 eV merupakan ciri khas dari struktur kerangka anion yang tereksitasi ke pita energi yang lebih tinggi dan berkaitan dengan struktur kerangka aluminosilikat dan eksiton oksigen yang terdelokalisasi. Sehingga pita thermo dan fotoluminesen dapat teramati yang ditunjukkan melalui struktur yang cacat berupa elektron yang berlubang pada kisi struktur kerangkanya.

2.2.2 Sintesis Sodalit

Prosedur sintesis sodalit melibatkan pembentukan fase metastabil pada kondisi hidrotermal. Tahap kristalisasi meliputi pembentukan dan pertumbuhan inti kristal yang melibatkan reaksi seperti pelarutan-presipitasi, polimerisasi-depolimerisasi, pembentukan inti, pembentukan kristal. Sintesis sodalit dipengaruhi oleh beberapa faktor yaitu komposisi batch, sumber reaktan, rasio Si/Al, alkalinitas, jumlah air, kation anorganik, templat organik, pelarut, suhu dan waktu hidrotermal, aging (pemeraman) (Čejka dkk., 2007).

Komposisi batch memberikan pengaruh yang penting pada sintesis sodalit. Pada Gambar 2.6 merupakan diagram yang menunjukkan pengaruh komposisi batch terhadap sintesis sodalit. Sintesis dilakukan pada sistem $\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$. Sodalit (HS) terbentuk ketika komposisi air berkurang menjadi 60-85%.

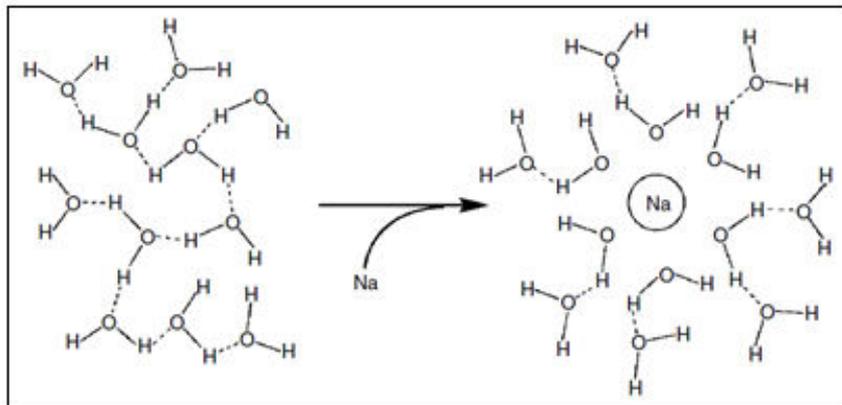


Gambar 2.6 Diagram komposisi reaksi sodalit (Čejka dkk., 2007).

Sumber Si dan Al mempengaruhi kristalisasi pada sintesis sodalit. Perbedaan dalam penggunaan sumber silika akan mempengaruhi reaktivitas dan proses kelarutan terutama kecepatan kristalisasi, ukuran dan morfologi kristal serta distribusi ukuran partikel. Silika yang mempunyai luas area yang besar akan lebih mudah larut dalam media alkali sehingga lebih cepat terjadi penjumlahan dan pembentukan inti berlangsung lebih cepat dan kristal yang terbentuk berukuran kecil. Sedangkan sumber Al akan mempengaruhi kristalisasi dari sodalit. Syarat terbentuknya sodalit jika rasio Si/Al rendah ($\text{Si/Al} < 5$) (Čejka dkk., 2007).

Alkalinitas didefinisikan sebagai rasio OH^-/Si atau rasio $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$. Alkalinitas yang besar sangat sesuai untuk sintesis sodalit. Semakin meningkat alkalinitas maka kelarutan Si dan Al semakin meningkat sehingga waktu pembentukan inti semakin pendek dan kecepatan kristalisasi meningkat. Selain itu ukuran partikel yang terbentuk menjadi berkurang dan distribusi ukuran partikelnya lebih seragam. Jumlah H_2O berperan pada sintesis sodalit yaitu sebagai pelarut selama proses hidrotermal. Seperti yang dijelaskan pada Gambar 2.6 bahwa sintesis sodalit sesuai jika komposisi air 60-85%. Jumlah air banyak akan memperkecil proses penjumlahan sehingga pembentukan inti dan pertumbuhan kristal menjadi lambat maka akan terbentuk kristal berukuran besar, jika jumlah air sedikit yang terjadi adalah sebaliknya (Čejka dkk., 2007).

Kation anorganik berperan dalam proses kristalisasi terutama berperan dalam pembentukan struktur kerangka sodalit. Kation anorganik yang biasanya digunakan yaitu logam alkali hidroksida (NaOH). Flanigen dkk., (2010) menjelaskan bahwa kation logam alkali berperan sebagai: i) sumber ion hidroksida yang diperlukan untuk melarutkan silika dan alumina; ii) sebagai pengarah struktur kerangka sodalit. Pada umumnya, kation berada pada kondisi basa membentuk MOH, menghasilkan konsentrasi ion OH^- yang diseimbangkan dengan konsentrasi kation. Ion OH^- mempengaruhi pelarutan dan reaksi polimerisasi-depolimerisasi silika dan aluminosilikat. Gambar 2.7 menunjukkan interaksi kation Na dengan air sehingga dapat berikatan dengan tetrahedral silika dan alumina membentuk struktur seperti *cage* (Čejka dkk., 2007).



Gambar 2.7 Diagram interaksi kation Na dengan molekul air (Čejka dkk., 2007).

Templat berperan sebagai pengarah struktur (SDAs). Templat mempengaruhi pembentukan sodalit melalui: i) proses pembentukan gelatin atau inti; ii) menstabilkan dan mengontrol pembentukan struktur geometri (terutama bentuk dan ukuran partikel). Pelarut berperan penting dalam proses kristalisasi sodalit. Pelarut mempengaruhi ukuran dan morfologi kristal sodalit karena viskositasnya. Pelarut dengan viskositas yang lebih besar dibandingkan dengan air akan mengurangi proses pelarutan dalam sistem gel. Sehingga transfer massa hanya terjadi melalui difusi dan mencegah kristalisasi melalui pengendapan serta mereduksi kecepatan difusi dalam suatu reaksi (Čejka dkk., 2007). Penggunaan templat organik sekaligus sebagai pelarut untuk sintesis sodalit salah satunya telah dilakukan oleh Yao dkk. (2008). Templat organik sekaligus sebagai pelarut yang digunakan yaitu etanol, aseton dan urea. Penggunaan templat organik sekaligus sebagai pelarut tersebut mempengaruhi ukuran kristal sodalit sehingga sodalit yang dihasilkan berukuran nanopartikel.

Suhu dan waktu kristalisasi mempengaruhi pembentukan inti dan pertumbuhan kristal. Semakin meningkat suhu kristalisasi maka kecepatan pembentukan inti dan pertumbuhan kristal semakin cepat sehingga terbentuk kristal yang berukuran lebih besar. Semakin meningkatnya waktu kristalisasi maka kristalinitas akan semakin meningkat dan terbentuk sodalit dengan ukuran partikel yang lebih besar (Čejka dkk., 2007).

Aging merupakan waktu penghomogenan suatu reagen campuran sebagai permulaan dari proses kristalisasi. Aging berperan penting pada campuran karena

berkaitan dengan pembentukan inti dan pertumbuhan kristal zeolit. Selama proses aging, pembentukan inti dan kristalisasi zeolit terjadi karena: (i) meningkatnya kecepatan pembentukan inti; (ii) berkurangnya waktu induksi dan waktu kristalisasi; (iii) berkurangnya ukuran kristal; (iv) meningkatnya jumlah kristal (Čejka dkk., 2007).

Metode sintesis sodalit secara langsung untuk mengkonversi kaolin menjadi sodalit terdiri dari pelarutan kaolin dalam larutan alkali misalnya NaOH atau KOH untuk mengekstrak alumina dan silika kemudian dilanjutkan dengan pemanasan untuk membentuk kristal sodalit. Senyawa aluminat atau silikat dapat ditambahkan untuk mengatur rasio Si/Al agar terbentuk sodalit. Sintesis sodalit dipengaruhi oleh beberapa parameter kondisi reaksi seperti suhu, tekanan, waktu reaksi, rasio Si/Al, larutan alkali (Bukhari dkk., 2014).

Transformasi kaolin menggunakan metode secara langsung melibatkan dua proses yaitu: (1) pelarutan kaolinit untuk melepaskan Si dan Al, (2) pembentukan sodalit, X⁻ adalah OH⁻. Hal ini seperti pada reaksi berikut:



Kristalisasi sodalit terjadi pada konsentrasi NaOH yang tinggi. Kaolinit mengalami transformasi secara hidrotermal yaitu fase amorf bertransformasi menjadi zeolit A kemudian bertransformasi menjadi sodalit (Rios dkk., 2009). Tahapan transisi dari aluminosilikat → fase amorf → zeolit LTA → sodalit telah dilaporkan oleh Liu dan Navrotsky (2007). Tahapan ini dapat digunakan untuk menjelaskan transformasi kaolinit dalam media alkali.

2.2.2.1 Metode Hidrotermal

Metode hidrotermal menjadi tahapan yang utama untuk sintesis sodalit. Metode ini telah dilakukan oleh Barrer (1982) dimana sintesis dilakukan pada suhu ruangan dengan tekanan 1 bar (dalam sistem tertutup) di dalam larutan. Berdasarkan pada suhu reaksi, sintesis hidrotermal digolongkan menjadi reaksi sintesis subkritisal dan superkritisal. Sintesis subkritisal melibatkan suhu pada range 100–240 °C, sedangkan suhu pada sintesis superkritisal mencapai lebih dari 1000 °C dan tekanan yang digunakan lebih dari 3000 bar. Pada kondisi

hidrotermal tersebut (suhu dan tekanan tinggi), air mempunyai peran yaitu: sebagai pelarut, merubah sifat fisika dan kimia dari reaktan dan produk, mempercepat reaksi, berperan dalam reaksi untuk mentransfer tekanan (Xu dkk., 2007).

Sintesis sodalit secara hidrotermal dilakukan pada vessel botol polipropilen, autoclave PTFE, dan autoclave teflon steel. Kadar pengisian vessel akan menentukan tekanan sistem. Pada umumnya, sintesis secara hidrotermal, kadar pengisian 50-80%, tekanan 200-3000 bar (Jihong, 2007). Keuntungan menggunakan sintesis hidrotermal adalah kereaktifan reaktan yang tinggi, penggunaan energi yang rendah, rendahnya polusi udara, mudah mengontrol larutan pembentukan fase metastabil, dan fase padatan yang khas (Byrappa dan Yoshimura, 2001; Julbe, dkk., 2000; Rabenau, 1985).

Metode sintesis sodalit menggunakan metode hidrotermal telah banyak dilaporkan oleh beberapa peneliti. Salah satunya dilaporkan oleh Hiyoshi, (2012) melaporkan bahwa nano sodalit berhasil disintesis menggunakan komposisi rasio $3 \text{ Na}_2\text{O} : 2 \text{ SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 : 46 \text{ NaCl} : 28 \text{ H}_2\text{O}$. Natrium aluminat ditambah dengan air dimasukkan ke dalam botol polipropilen, dicampur hingga terbentuk campuran yang homogen. Natrium metasilikat dan natrium klorida ditambahkan selanjutnya distirer (pelarutan) hingga terbentuk campuran yang homogen. Campuran dipindahkan ke teflon autoclave, hidrotermal pada suhu $150 \text{ }^\circ\text{C}$ selama 42 jam. Padatan yang terbentuk disentrifugasi 2 kali hingga pH 8-9. Padatan dikeringkan pada suhu ruangan dan dihaluskan agar terbentuk serbuk.

2.2.2.2 Pengaruh Waktu Hidrotermal

Kaolinit merupakan komponen utama pada kaolin. Struktur kaolinit terdiri dari lapisan silika tetrahedral dan lapisan silika oktahedral. Kaolinit memiliki stabilitas molekul yang tinggi, substitusi isomorfis yang terbatas. Oleh karena itu agar dapat digunakan sebagai sumber silika dan alumina untuk sintesis sodalit dengan merubah struktur kimia dan sifat fisika dari kaolin melalui pelarutan kaolin dengan media alkali. Tujuan pelarutan kaolin dengan media alkali untuk melarutkan kaolinit. Metode tersebut dilakukan dengan mereaksikan kaolin dan

larutan alkali melalui stirer. Pelarutan (stirer) pada campuran selama aging dapat meningkatkan homogenitas pada campuran tersebut.

Aging atau pemeraman merupakan faktor penting dalam proses sintesis sodalit. Aging yang terlalu lama tidak diinginkan karena luas permukaan mikropori dan kristalinitas sampel relatif menurun akibat pertumbuhan dan aglomerasi partikel gel yang cepat. Waktu yang tepat dalam aging menguntungkan bagi pembentukan struktur kerangka, ukuran partikel dan sifat dielektrik dari unit sel dalam koloid. Proses yang terjadi selama aging adalah pemutusan sebagian atau depolimerisasi silika dalam kondisi basa. Fase amorf yang terbentuk selama proses aging pada suhu kamar sehingga mempercepat tahap kristalisasi. Dengan meningkatkan waktu aging, jumlah inti kristal yang terbentuk semakin meningkat (Byrappa dan Yoshimura, 2013).

Waktu hidrotermal merupakan parameter yang penting untuk sintesis sodalit. Waktu hidrotermal mempengaruhi pertumbuhan kristal sodalit. Semakin lama waktu hidrotermal maka kristalinitasnya semakin meningkat. Hal ini dikarenakan semakin meningkatnya waktu hidrotermal maka kecepatan pembentukan inti dan pertumbuhan kristal semakin meningkat sehingga kristalinitasnya meningkat (Čejka dkk., 2007). Sebagai contoh, waktu kristalisasi mendukung tahapan terbentuknya fase metastabil yaitu zeolit A (LTA) dan zeolit X (FAU) dapat bertransformasi membentuk sodalit (SOD) dan zeolit P (GIS) di dalam media alkali aluminosilikat (Davis dan Lobo, 1992).

Beberapa penelitian mengenai pengaruh waktu hidrotermal terhadap sintesis sodalit diantaranya telah dilaporkan oleh Buhl dkk. (2011). Sintesis sodalit dengan rasio komposisi $20 \text{ Na}_2\text{O} : 2 \text{ SiO}_2 : 1,5 \text{ Al}_2\text{O}_3 : 15 \text{ NaCl} : 238 \text{ H}_2\text{O}$. Campuran disiapkan dengan melarutkan natrium metasilikat ke dalam setengah dari jumlah air yang digunakan hingga terbentuk larutan yang jernih, selanjutnya ditambahkan setengah dari jumlah NaOH dan NaCl yang digunakan. Prosedur pembuatan aluminat sama dengan prosedur pembuatan larutan silikat. Larutan silikat dan aluminat dicampurkan dan distirer selama 15 menit. Gel dimasukkan ke dalam 50 mL teflon autoclave, dipanaskan pada suhu $60 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan variasi waktu pemanasan 1, 3, 6, 12, 24, 48, 96 jam. Produk yang dihasilkan dicuci dengan 200 mL air selanjutnya dikeringkan pada suhu $110 \text{ }^\circ\text{C}$ selama 24 jam.

Kristalinitas meningkat seiring dengan meningkatnya waktu hidrotermal. Kristalinitas tertinggi pada waktu hidrotermal 96 jam.

Pada Tabel 2.3 melaporkan beberapa penelitian yang menggunakan parameter waktu hidrotermal. Berdasarkan pada Tabel 2.3 dapat disimpulkan bahwa sintesis sodalit dipengaruhi oleh beberapa faktor yaitu material yang digunakan, komposisi rasio dan waktu hidrotermal. Sodalit terbentuk pada waktu hidrotermal yang singkat pada saat menggunakan material dari bahan kimia (bahan komersil) serta komposisi rasio Na_2O yang besar. Material dari alam dan limbah serta komposisi rasio Na_2O yang besar dan menggunakan metode kalsinasi menghasilkan sodalit pada waktu hidrotermal yang lebih singkat jika dibandingkan dengan menggunakan metode secara langsung dari bahan kaolin dengan komposisi rasio Na_2O yang hampir sama. Pada metode secara langsung perlu dilakukan preparasi awal seperti pelarutan (stirer) dan aging pada waktu yang sesuai sehingga kaolinit larut dengan sempurna. Hal tersebut belum dilakukan oleh beberapa peneliti pada Tabel 2.3 sehingga penghomogenan sebagai awal permulaan kristalisasi belum terbentuk secara maksimal maka waktu hidrotermal yang diperlukan menjadi lama.

Tabel 2.3 Sintesis sodalit dipengaruhi oleh material yang digunakan, komposisi rasio dan waktu hidrotermal

Material	Komposisi rasio	Waktu dan suhu Hidrotermal	Hasil	Referensi
Kaolin, NaOH, air distilat (metode secara langsung)	5 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 2SiO ₂ : 200 H ₂ O	6, 150 jam; 85 °C	Sodalit, waktu hidrotermal 150 jam	Rees dan Chandrasekhar, 1993
Kaolin, NaOH, air distilat (metode secara langsung)	0,2-0,6 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 1,1-1,3 SiO ₂	70 jam; 93 °C	Terbentuk sodalit	Kallai dan Lapides, 2006
Kaolin, NaOH, air distilat (metode secara langsung)	Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 2SiO ₂ : 86,4H ₂ O	6, 72, 120 jam; 100 °C	Pada waktu hidrotermal 120 jam terbentuk sodalit dengan <i>impurities</i> zeolit A.	Rios dkk., 2009
Abu sekam padi, natrium aluminat, NaOH, air (metode kalsinasi)	50 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 1,2 SiO ₂ : 1000 H ₂ O	6, 10, 15 jam, 90 °C	Sodalit, waktu hidrotermal 15 jam	Naskar dkk., 2011
Illit, NaOH, air (metode kalsinasi)	Na ₂ O/Al ₂ O ₃ =10,39 ; H ₂ O/Na ₂ O = 30,78 ; SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 3,43	6, 24, 72, 96 jam	Sodalit, waktu hidrotermal 96 jam	Mezni dkk., 2011
Clay paligorskit, NaOH, aluminium sulfat (metode kalsinasi)	x Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : y SiO ₂ : 1000H ₂ O, x= 3,18; 3,34; 3,49 y= 2,15; 2,25; 2,36	24 jam; 180 °C	Sodalit	Jiang dkk., 2012
Natrium aluminat, NaOH, air, silika <i>colloidal</i> , etanol	3,61 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 5 SiO ₂ : 52,84 H ₂ O: nC ₂ H ₆ O (n= 0,4,8,16,32,48)	0,5; 1; 2; 3; 5; 8; 16; 25; 35; 45; 65 jam, 90 °C	Sodalit, waktu hidrotermal 5-65 jam. Semakin lama waktu kristalisasi, kristalinitas semakin meningkat	Huang dkk., 2011
TEOS, TPAOH, NaOH, natrium aluminat, air	6,07 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 66 H ₂ O	0, 1, 2, 3 jam; 80 °C	Sodalit , waktu hidrotermal 3 jam	Yao dan Wang, 2006
Natrium aluminat, NaOH, <i>fumed</i> silika, air distilat	19 Na ₂ O : Al ₂ O ₃ : 4 SiO ₂ : 190H ₂ O	0,5; 1; 1,5; 2; 3; 5 jam; 60 °C	Sodalit nanokristal, waktu hidrotermal 5 jam.	Fan dkk., 2008

2.2.3 Aplikasi Sodalit

Penelitian tentang aplikasi sodalit telah banyak dilakukan. Aplikasi sodalit antara lain sebagai material pengolahan limbah, penyimpan hidrogen, pemisahan hidrogen, support katalis, material optik (Jiang dkk., 2012). Khajavi dkk. (2010) telah melaporkan bahwa sodali dapat digunakan untuk memisahkan molekul yang berukuran kecil seperti NH_3 (2,55 Å), He (2,6 Å), H_2O (2,65 Å), H_2 (2,95 Å) dari gas atau campuran larutan. Kristal sodalit yang berukuran mikro dan memiliki luas permukaan yang kecil dilakukan penelitian agar dapat diaplikasikan sebagai katalis. Penelitian tersebut menunjukkan bahwa sodalit merupakan material yang potensial sebagai material katalis. Sodalit mesopori dengan luas permukaan sekitar $190 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ telah berhasil disintesis dan digunakan sebagai katalis basa untuk reaksi katalisis. Nanokristal sodalit dengan luas permukaan sekitar $93 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ telah berhasil disintesis dan aktivitas katalisnya untuk epoksidasi alkena dengan hidrogen peroksida (Hiyoshi, 2012). Beberapa aplikasi sodalit ditunjukkan pada Tabel 2.4. Salah satu aplikasi sodalit yaitu untuk adsorpsi logam berat Pb(II).

2.3 Tinjauan Instrumentasi

2.3.1 X-Ray Diffraction (XRD)

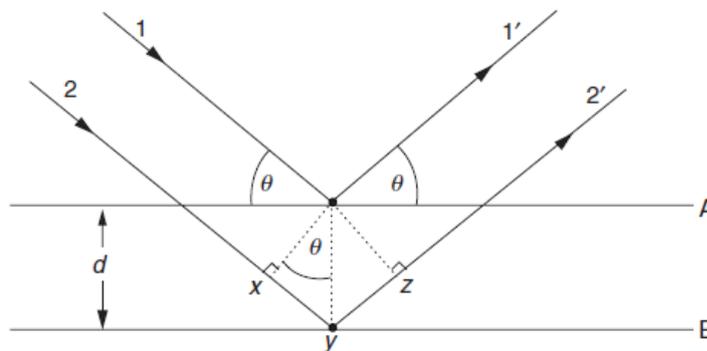
XRD Powder merupakan salah satu metode karakterisasi material yang sangat penting dan membantu untuk mengidentifikasi fasa kristalin atau bentuk struktur material padatan, sifat stuktur material seperti ukuran kristalin, komposisi fasa, orientasi atom-atom, dan struktur defek yang dimiliki material sampel. XRD menggunakan sinar-X sebagai sumber sinar dalam teknik karakterisasinya.

Sinar-X adalah bagian dari radiasi gelombang elektromagnetik dengan panjang gelombang berkisar antara 10^{-10} m sampai dengan 10^{-8} m (1-100 Å), terletak diantara panjang gelombang sinar gamma (γ) dan sinar ultraviolet. Namun hanya 0,3 – 0,25 Å yang digunakan sebagai sumber sinar untuk difraksi sinar-X. Sinar-X dihasilkan akibat adanya perbedaan potensial antara filamen yang bertindak sebagai katoda dengan anoda berupa logam pada suatu ruang vakum, sehingga terjadi pergerakan elektron dengan energi besar diantara kedua elektroda tersebut (West, 1984).

Tabel 2.4 Aplikasi Sodalit

Struktur	Teknik Aplikasi	Aplikasi	Referensi
Sodalit mesopori dengan struktur hierarki mesopori/mikropori	GC dan spektroskopi massa	Reaksi kondensasi Knoevenagel, Claisen-Schmidt dan reaksi asetonil aseton.	Shanbag dkk., 2009
Sodalit pellet	AAS	Adsorpsi Pb^{2+}	Yu dkk., 2014
Nanokristal sodalit	GC	Reaksi epoksidasi dari 2 sikloheksana-1 dengan H_2O_2	Hiyoshi, 2012
Sodalit membran	ICP-OES	Desalinasi air laut	Khajavi dkk., 2010
Sodalit	ICP	<i>Removal</i> Pb^{2+} , NH_4^+ , PO_4^{3-} dalam larutan.	Wajima dan Munakata, 2011
Sodalit	TG-DSC	Adsorpsi air	Günter dkk., 2015
Monolith sodalit	GC	Katalis basa untuk reaksi kondensasi Knoevenagel: 4-isopropil benzaldehid (4-IPB) dengan etilsianoasetat (ECA)	Sachse dkk., 2010
Sodalit	Flame fotometri, XRF	Ion <i>exchange</i> (Cd^{2+} , Ag^+ , Pb^{2+})	Eiden dan Assmann, 2002
Sodalit membran	Aliran gas volumetri	Pemisahan H_2/CH_4	Nabavi dkk., 2014

Dasar dari prinsip pendifraksi sinar-X yaitu difraksi sinar-X terjadi pada hamburan elastic foton-foton sinar-X oleh atom dalam sebuah kisi. Hamburan monokromatis sinar-X dalam fasa tersebut memberikan interferensi yang konstruktif. Dasar dari penggunaan difraksi sinar-X untuk mempelajari kisi kristal berdasarkan persamaan Bragg. Menurut pendekatan hukum Bragg, kristal dalam suatu material terdiri atas bidang-bidang datar berupa kisi kristal, yang setiap kisi kristalnya masing-masing berfungsi sebagai cermin. Oleh karena itu, jika suatu material ditumbuk oleh berkas sinar-X dengan panjang gelombang tertentu, maka sebagian sinar-X dipantulkan oleh bidang tersebut yang merupakan atom-atom penyusun material dengan sudut pantul sama dengan sudut datangnya seperti yang diilustrasikan pada Gambar 2.8, sedangkan sebagian sinar-X lainnya diteruskan menembus bidang.



Gambar 2.8 Difraksi sinar-X oleh kisi kristal menurut Hukum Bragg (West, 1984).

Berkas sinar yang dipantulkan oleh dua buah bidang pemantul atau lebih hanya saling menguatkan apabila memenuhi Hukum Bragg sebagai berikut:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.1)$$

Di mana n adalah orde sinar (bilangan bulat, mulai dari 1), λ adalah panjang gelombang dari berkas sinar, θ adalah sudut pantulan (sama dengan 90° dikurangi dengan sudut normal berkas sinar datang) dan d adalah jarak antar bidang pemantul. Dengan mencocokkan nilai-nilai *d-spacing* tersebut dengan indeks Hanawalt, maka dapat diketahui senyawa pada sampel yang dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X tersebut.

Pola difraksi suatu material kristalin dihasilkan sesuai dengan susunan atom-atom pada kristal dari material sampel. Sebagaimana di ketahui bahwa suatu sistem kristal memiliki susunan atom yang tersusun secara teratur dan berulang, serta memiliki jarak antar atom yang ordenya sama dengan panjang gelombang sinar-X. Bentuk pola difraksi sinar-X oleh bidang kisi kristalin dideteksi dengan memposisikan sumber sinar-X, sampel, dan detektor secara benar. Sehingga pola difraksi yang dihasilkan berupa deretan puncak-puncak difraksi dengan intensitas yang bervariasi sepanjang nilai sudut 2θ . Tingginya intensitas yang terdeteksi bergantung pada jumlah atom atau ion, dan distribusinya pada material sampel yang dikarakterisasi. Pola difraksi yang dihasilkan bersifat khas dan karakteristik, bergantung pada kisi kristal, parameter sel, dan panjang gelombang sinar-X yang digunakan (West, 1984).

Ukuran partikel dapat ditentukan melalui hasil difraksi sinar-X melalui pengukuran lebar puncak. Semakin lebar puncaknya maka mengindikasikan ukuran partikelnya kecil. Untuk memahami mengapa partikel berukuran kecil dapat dijelaskan secara kualitatif sebagai berikut. Sudut Bragg menunjukkan kondisi dimana masing-masing bidang pada kristal mendifraksikan satu panjang gelombang. Sinar difraksi dengan bidang kristal membentuk sudut θ_1, θ_2 . Semakin besar range sudut antara θ_1 dan θ_2 maka lebar puncak difraksi semakin besar sehingga meningkatkan ketebalan kristal. Jika jumlah bidang sangat besar maka pelebaran tidak terjadi karena $(\theta_2 - \theta_1)$ sangat kecil. Rumus yang digunakan untuk menentukan ukuran kristal yaitu persamaan Scherrer.

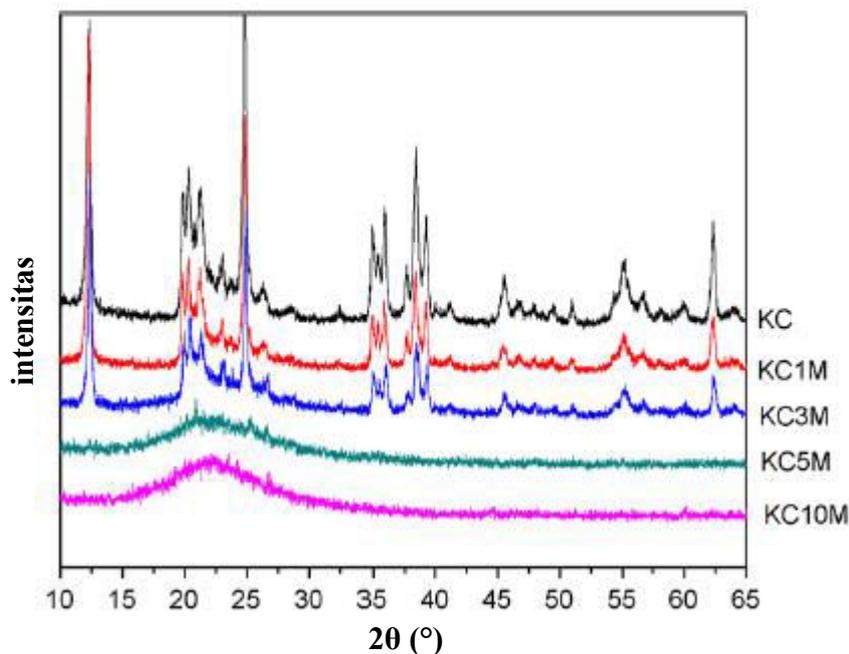
$$d = \frac{0.9 \lambda}{B \cos \theta} \quad (2.2)$$

$$B^2 = B_M^2 - B_S^2 \quad (2.3)$$

Pada persamaan (2.2), d merupakan ukuran partikel kristal (nm). λ merupakan panjang gelombang (0,154 nm). θ merupakan sudut Bragg. B (FWHM) merupakan lebar puncak, dihitung dari lebar setengah puncak pada difraksi puncak 2 1 1 (Hiyoshi, 2012). Pada persamaan (2.3), B_M merupakan lebar puncak (radian) pada setengah tinggi puncak dan B_S merupakan lebar puncak dari material standar (West, 1984). Nilai B (FWHM) ditentukan menggunakan *Gaussian Fit* pada *software* origin untuk difraksi puncak 2 1 1 pada $2\theta = 24.65^\circ$.

Contoh hasil difraksi sinar-X kaolin dari penelitian yang telah dilaporkan oleh Panda dkk, (2010). Pengaruh dari treatment asam sulfat pada karakteristik fisiko-kimia kaolin *clay*. Kaolin alam direfluks dengan asam sulfat konsentrasi yang berbeda 1M, 3M, 5M dan 10M pada suhu 110 °C selama 4 jam diikuti dengan kalsinasi pada 500 °C selama 2 jam.

Pada gambar 2.9 Menunjukkan profil XRD dari kaolin awal sebelum dan sesudah di treatment dengan asam sulfat. Kaolin terdefinisi 2θ pada puncak 12 dan 25 (sesuai dengan nilai d 7,154 menunjukkan bahwa refeksi pada 0 0 1 merupakan puncak karakteristik khas kaolin). Adalagi puncak yang berhubungan dengan nilai 2θ 34-36°, 38-42°, 45-55°, dan 54-63° mungkin berbeda untuk jenis kaolinit dari asal yang berbeda. Setelah kaolin ditreatment ditemukan intensitas puncak menurun secara progresif. XRD dari 5M dan 10M diperlakukan kaolin menunjukkan bahwa treatment dengan asam pekat yang tinggi mengakibatkan pembentukan fasa silica menjadi amorf (Panda dkk, 2010).

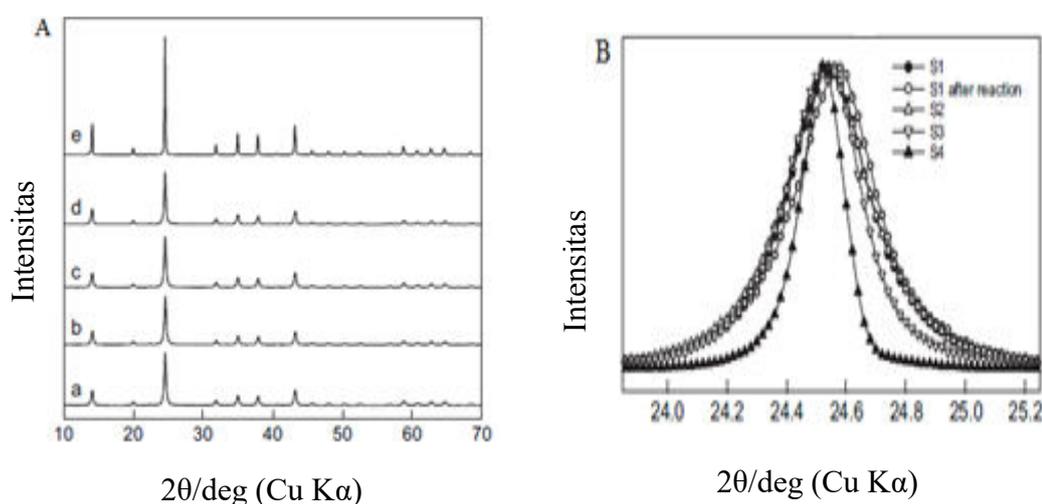


Gambar 2.9 Difraktogram kaolin awal dan kaolin *treatment* (Panda dkk, 2010).

Sedangkan Contoh hasil difraksi sinar-X sodalit dari penelitian yang telah dilaporkan oleh Hiyoshi, (2012). Sodalit nanopartikel berhasil disintesis

menggunakan bahan natrium metasilikat, natrium aluminat dan natrium klorida dengan waktu kristalisasi selama 42 jam pada suhu 150 °C.

Berdasarkan pada Gambar 2.10 (B) puncak XRD sodalit pada difraksi 2 1 1 menunjukkan bahwa lebar puncak meningkat yaitu: $S4 < S3 < S2 = S1$. Ukuran partikel pada sampel sodalit (d_{XRD}) dihitung menggunakan persamaan Scherrer pada puncak difraksi 2 1 1. Hasil d_{XRD} dari S1, S2, S3 menunjukkan bahwa sampel berukuran nano partikel, sedangkan d_{XRD} pada sampel S4 tidak dapat dihitung karena lebar puncak yang terlalu sempit (Hiyoshi, 2012).



Gambar 2.10 (A) XRD sampel sodalit, (B) Puncak sodalit pada difraksi 2 1 1 (Hiyoshi, 2012).

Tabel 2.5 Sintesis sodalit nanopartikel

Sampel	Suhu, °C	Waktu (jam)	Na ₂ SiO ₃ .9H ₂ O	NaAlO ₂	NaCl	H ₂ O	d_{XRD} , (nm)	Si:Al:Na:H ₂ O:NaCl
S1	150	42	12.6	3.65	60	3.88	46	2: 1: 3:28:
S2	150	42	12.6	3.65	60	3.88	45	46
S3	150	42	12.6	3.65	30	20.0	43	2: 1: 3:28:
							54	4.6
S4	180	36	Na-A 3.69	NaOH 7.58	NaCl 21.1	H ₂ O 40	-	2: 1: 3:68: 23
								2:1: 10: 220: 36

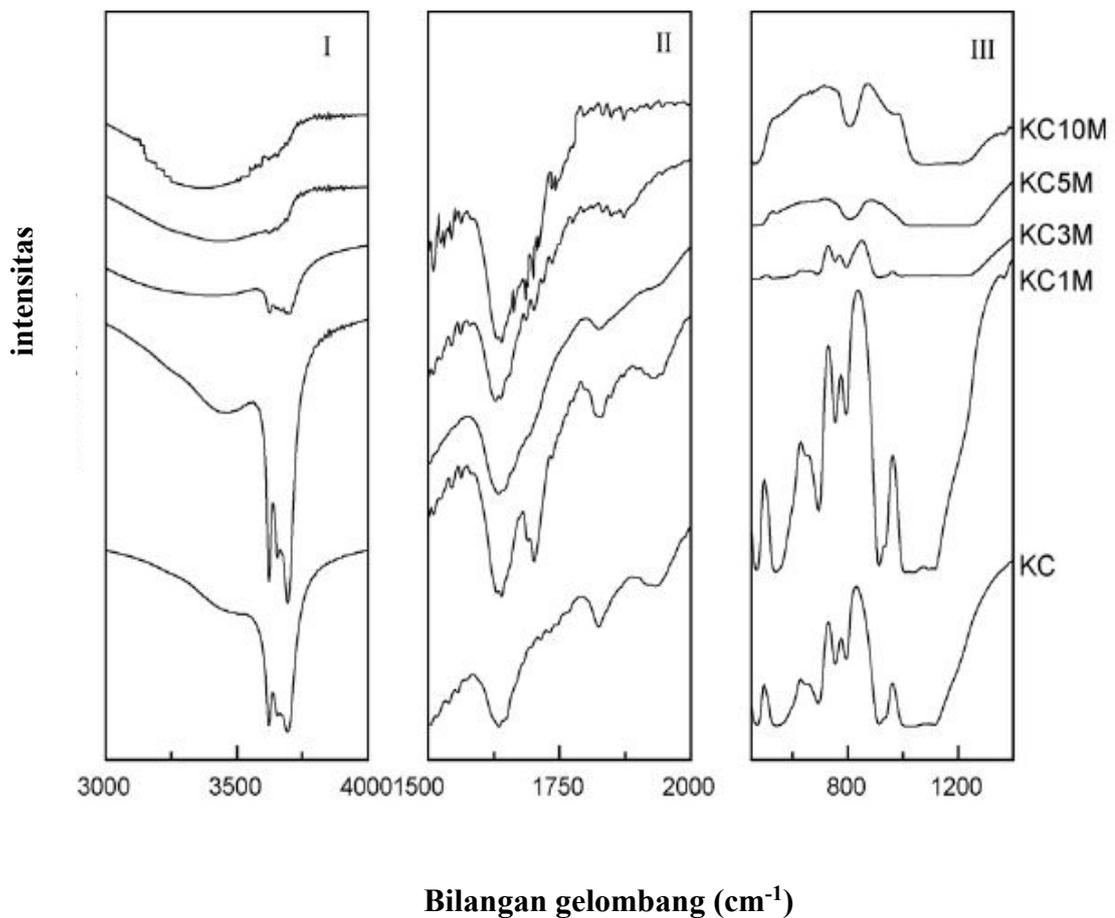
2.3.2 *Fourier Transform Infrared (FTIR) Spectroscopy*

FTIR digunakan untuk mengidentifikasi material, menentukan komposisi dari campuran, dan membantu memberikan informasi dalam memperkirakan struktur molekul. Sampel yang digunakan biasanya berupa material dalam keadaan padat, cair, atau gas. Ukuran sampel umumnya beberapa milligram, tetapi spektra dapat diperoleh dari 50 pikogram dengan teknik dan aksesoris spesifik. Analisa dengan metode ini didasarkan pada fakta bahwa molekul memiliki frekuensi spesifik yang dihubungkan dengan vibrasi internal dari atom gugus fungsi. Ketika sampel diletakkan dalam berkas radiasi IR, sampel mengabsorpsi radiasi pada frekuensi yang sesuai dengan frekuensi vibrasional molekular dan meneruskan seluruh frekuensi yang lain.

Spektrometer IR mengukur frekuensi dari radiasi yang terabsorp, dan plot hasil dari energi terabsorp versus frekuensi dikenal sebagai spektrum IR dari material yang dianalisis. Identifikasi senyawa dapat dilakukan karena perbedaan struktur kimia material akan memberikan vibrasi karakteristik dan menghasilkan spectra IR yang unik yaitu daerah sidik jari untuk tiap-tiap material. Pengukuran FTIR standar berlangsung pada range $7000\text{--}400\text{ cm}^{-1}$, tetapi dapat pula mencapai $\sim 50\text{ cm}^{-1}$, dengan menggunakan tambahan sumber sinar, optik, dan detektor. Keuntungan dari metode FTIR ini yaitu radiasi sumber sinar yang lebih tinggi, perbandingan sinyal/noise ditingkatkan, mengurangi waktu pengukuran, dan akurasi pengukuran yang lebih tinggi dengan spektrometer dispersif cahaya konvensional (Sibilia, 1996).

Spektra IR untuk sampel padatan dicontohkan oleh kaolin yang ditunjukkan pada Gambar 2.11. Adapun puncak karakteristik dari kaolin sesuai dengan tabel 2.6. Berdasarkan Gambar 2.11 terlihat bahwa hasil IR dari sampel pada area O-H stretching 3620 cm^{-1} , 3653 cm^{-1} , 3695 cm^{-1} menunjukkan Al-OH stretching. Gugus hidroksyl terletak diantara tetrahedral dan oktahedral memberikan penyerapan pada panjang gelombang di 3620 cm^{-1} . Dan serapan lemah di 3653 cm^{-1} vibrasi stretching. Dan 3445 cm^{-1} serapan air. Ketika kaolin di-*treatment* dengan asam tidak memberikan banyak variasi puncak untuk asam 1M. Namun, dengan peningkatan konsentrasi asam intensitas puncak ditemukan menurun progresif. Untuk konsentrasi asam 5M dan 10M pita serapan hidroksyl

sangat lemah. Pada area tengah, pita serapan karakteristik kaolin pada di 1634 cm^{-1} , 914 cm^{-1} , 795 cm^{-1} dan 755 cm^{-1} . IR puncak pada 914 cm^{-1} , 795 cm^{-1} dan 755 cm^{-1} merupakan vibrasi dari Al-Al-OH, Al-Mg-OH dan Si-O-Al. Puncak pada 1634 cm^{-1} cukup intens merupakan vibrasi serapan air pada permukaan silika yang dihasilkan akibat pencucian. Puncak ini ditemukan menghilang pada kaolin dengan treatment 10M karena disintegrasi struktural. Pada puncak baru diamati pada 805 cm^{-1} untuk sampel yang di-*treatment* asam, diperoleh dengan peningkatan kekuatan asam. Puncak ini terbentuk karena silika amorf (Panda dkk, 2010).

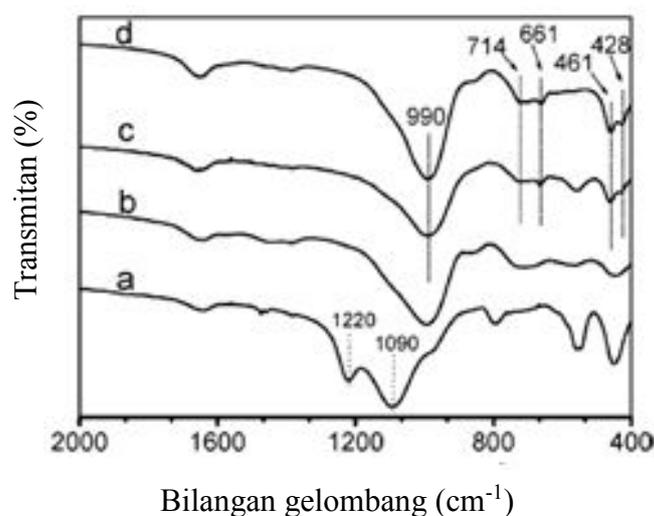


Gambar 2.11. Spektra FTIR kaolin murni dan kaolin *treatment* (Panda dkk, 2010).

Tabel 2.6 Bilangan gelombang spektra FTIR dari kaolin

Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)	Vibrasi
3445	Al-OH-H _{str} (air physisorb)
3620, 3653, 3695	Al-OH-H _{str} (grup hydroxyl, octahedral)
1634	H-O-H _{bending} (Physisorb)
912	Al-Al-OH _{str}
1032, 1101, 1114	Si-O _{str}
795	Al-Mg-OH _{str}
755	Si-O-Al _{str}
805	Si-O _{str}
693	Si-O _{str} , Si-O-Al _{str}
541	Si-O _{str} , Si-O-Al _{str}
472	Si-O _{str}

Spektra IR untuk sampel padatan dicontohkan oleh sodalit yang ditunjukkan pada Gambar 2.12. Berdasarkan Gambar 2.12 terlihat bahwa hasil IR dari sampel padatan dengan variasi waktu hidrotermal selama 0, 1, 2, 3 jam terlihat bahwa spektra FTIR yang menunjukkan karakteristik dari spektra sodalit ditunjukkan pada Gambar 2.12 (d). Spektra karakteristik sodalit terdapat pada bilangan gelombang 990 cm⁻¹ menunjukkan stretching asimetri (T-O-T, T= Si, Al). Bilangan gelombang 714 dan 661 cm⁻¹ berkaitan dengan stretching simetri (T-O-T), dan bilangan gelombang 461 dan 428 cm⁻¹ merupakan bending vibrasi O-T-O.



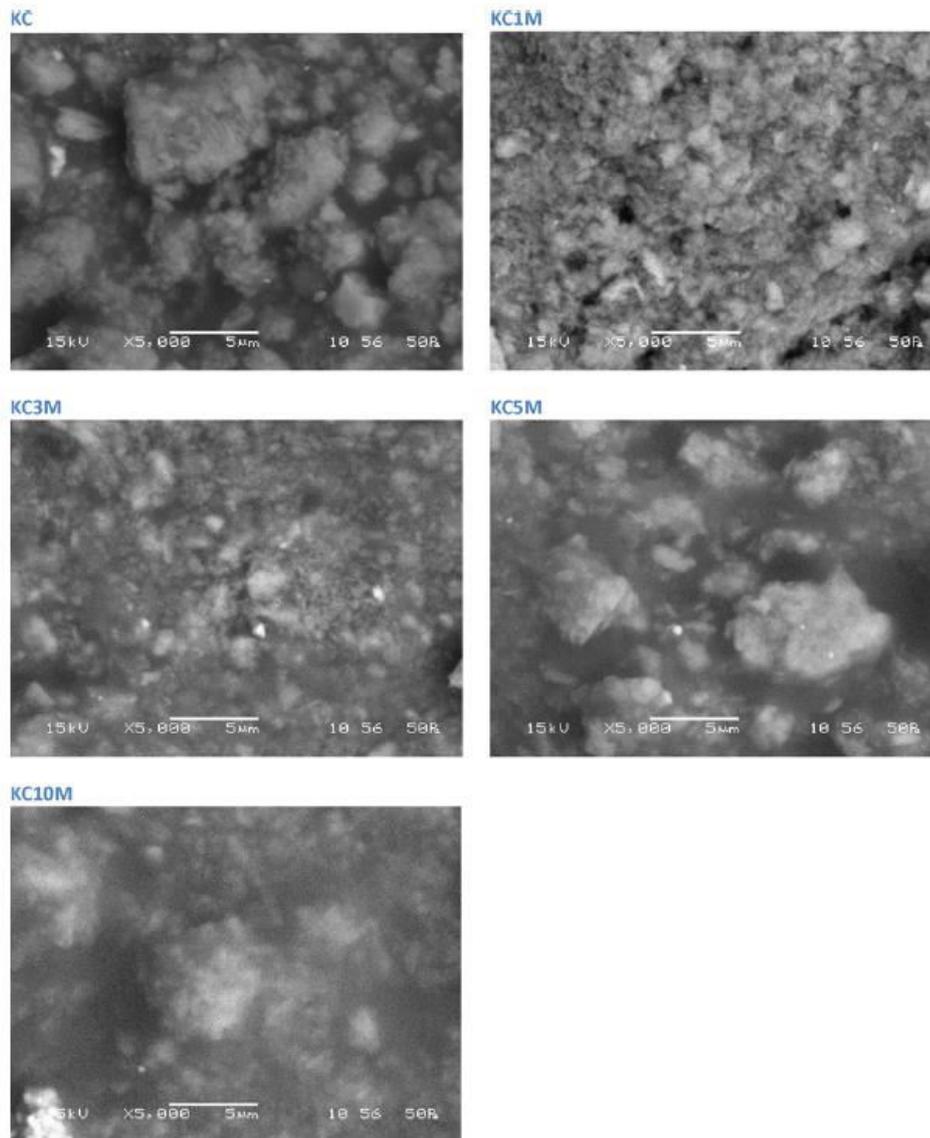
Gambar 2.12 Spektra FTIR pada sampel dengan variasi waktu hidrotermal: (a) 0 jam (b) 1 jam, (c) 2 jam, (d) 3 jam (Yao, dkk., 2006).

2.3.3 *Scanning Electron Microscopy - Energy Dispersive X-Ray (SEM – EDX)*

Elektron mikroskopi merupakan instrumen untuk mengetahui morfologi, struktur dari suatu material padatan. *Scanning electron microscopy* (SEM) merupakan instrumen optik mikroskopi untuk mempelajari tentang tekstur, topografi serta gambar permukaan dari suatu padatan, karena jarak fokus pada instrumen SEM menghasilkan gambar 3 D. Mikroskop elektron dioperasikan melalui transmisi atau refleksi. Transmisi sampel sebaiknya lebih kecil dari ~ 2000 Å karena elektron berinteraksi kuat dengan material padatan dan terabsorb ke partikel (West, 2014).

Pada instrumen SEM, elektron dari elektron gun, mempunyai kecepatan 5-50 kV, terfokus pada *spot* yang kecil, diameter 50-500 Å pada permukaan sampel. Elektron beam mengenai sampel, lebar penetrasi elektron beam lebih dari 1 μm . Lepasnya elektron dan radiasi tergantung pada energinya. *Back-scattered electron* (BSE) mampu keluar dari daerah yang terdalam pada sampel tersebut sehingga BSE tersebut mampu menghindari tumbukan kedua setelah adanya *back-scattered* awal. Lepasnya elektron pada daerah *secondary* (SE) atau radiasi emisi lebih mudah karena memiliki energi yang lebih rendah daripada sinar datang (West, 2014).

Prinsip SEM yaitu berkas elektron yang dihasilkan oleh *electron gun* mengenai permukaan sampel di daerah yang sangat kecil. Pada saat elektron berinteraksi dengan sampel maka dihasilkan *secondary electron* (SE). Elektron ini masuk ke dalam detektor dan diubah menjadi sinyal listrik yang akan menghasilkan gambar pada layar monitor. Aplikasi utama dari SEM adalah untuk melihat material menggunakan perbesaran yang maksimum dan memberikan informasi tentang ukuran, bentuk dan komposisi dari permukaan padatan. Metode pengoperasian SEM dilengkapi dengan instrumen *energy dispersive X-Ray* (EDX) untuk emisi spektra X-ray. EDX digunakan untuk mendapatkan komposisi unsur yang terdapat pada sampel padatan. Instrumen SEM yang dilengkapi dengan detektor EDX, sangat berperan untuk mengidentifikasi unsur dan memetakan distribusi unsur pada sampel (West, 2014).



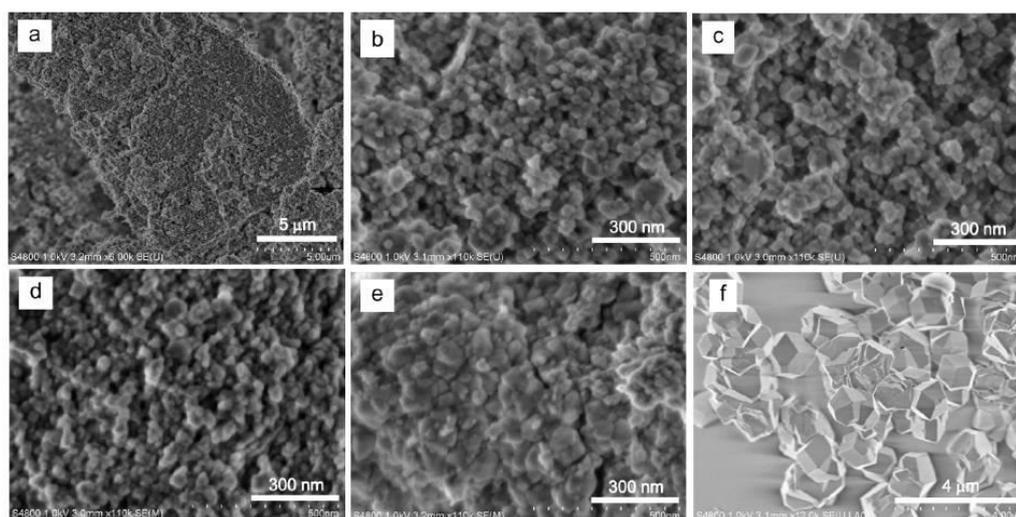
Gambar 2.13 SEM kaolin murni dan kaolin *treatment* (Panda dkk, 2010).

Gambar SEM dari sampel kaolin yang berbeda ditunjukkan pada gambar 2.13. mikrograf SEM pada KC menunjukkan partikel yang besar yang tampak membentuk agregat. Gambar SEM KC1M, KC3M, KC5M dan KC10M menunjukkan partikel dengan morfologi berbeda. Mikrograf dari KC1M dan KC3M mengindikasikan penurunan ukuran struktur kaolin *treatment* asam serta SEM dari KC5M dan KC10M menunjukkan membentuk agregat bukan partikel yang terpisah.

Gambar 2.14 menunjukkan gambar SEM sampel sodalit. Gambar S1 (a) dan S2 (d) menunjukkan partikel berukuran mikrometer mempunyai permukaan yang kasar. Gambar S1 (b) kristal berukuran kecil (<100 nm). Gambar S3 (e) menunjukkan kristal berukuran besar dan membentuk agregat. Gambar S4 (f) menunjukkan kristal berukuran mikrometer. Hasil tersebut menunjukkan bahwa komposisi air yang sedikit sesuai untuk sintesis sodalit berukuran nano partikel dengan luas area yang besar (Hiyoshi, 2012). Adapun rasio komposisi Si, Al, Na, Cl berdasarkan hasil SEM-EDX ditunjukkan pada Tabel 2.7.

Tabel 2.7 Hasil SEM-EDX pada sampel sodalit (Hiyoshi, 2012)

Sampel	Si:Al:Na:Cl (SEM-EDX)
S1 (a)	1: 1.1: 1.5: 0.38
S1 (b)	1: 1.0: 1.1: 0.29
S2	1: 1.1: 1.5: 0.35
S4	1: 1.1: 1.3: 0.31
S4	1: 1.1: 1.4: 0.39



Gambar 2.14 Sodalit: S1 (a), (b), (c); (S2) (d); S4 (e) dan (f) (Hiyoshi, 2012).

2.3.4 Atomic Absorption Spectrometer (AAS)

Atomic Absorption Spectrometer (AAS) merupakan metode kualitatif untuk identifikasi atom. Prinsip AAS yaitu proses perubahan dari suatu logam yang terlarut di dalam air menjadi atom bebas (proses atomisasi). Metode

atomisasi yang digunakan yaitu atomisasi flame. Sampel berupa larutan masuk ke *spray chamber* karena adanya tekanan yang tinggi dari pembakaran gas sehingga larutan ini terpecah membentuk bulir-bulir kabut. Aerosol yang berupa kabut tersebut bercampur dengan gas pembakaran di *spray chamber* selanjutnya pada saat pembakaran, energi panas dari flame melarutkan aerosol kabut tersebut menjadi aerosol kering yang berupa partikel padatan dan kecil sehingga didapatkan jenis molekul, ion dan unsur bebas dan senyawa logam akan berubah menjadi atom-atomnya. Kemudian terjadi penyerapan sinar oleh atom. Banyaknya sinar yang diserap berbanding lurus dengan kadar zat.

Sumber sinar yang digunakan yaitu *hollow cathode lamp* (HCL) yang terdiri dari katoda dan anoda yang tertutup dan diisi dengan gas Ne atau Ar pada tekanan yang rendah. Ketika potensial melewati elektroda, gas terionisasi. Muatan ion positif bertabrakan dengan muatan ion negatif dari katoda pada permukaan katoda. Sebagian atom tereksitasi dan memancarkan radiasi karakteristik dari logam yang dihasilkan dari katoda.

Pada AAS yang terukur di detektor adalah serapan (absorbansi) yang dialami oleh sinar yang melalui kumpulan atom-atom. Serapan akan bertambah dengan bertambahnya jumlah atom yang menyerap sinar tersebut. Sinar tersebut bersifat monokromatis dan mempunyai panjang gelombang (λ) tertentu. Satu atom unsur X akan menyerap sinar yang panjang gelombangnya sesuai dengan unsur X tersebut. Dengan menyerap sinar tertentu, atom tersebut tereksitasi ke tingkat energi yang lebih tinggi.

Serapan yang dialami oleh sinar dengan konsentrasi analit dipergunakan untuk menganalisa larutan sampel yang tidak diketahui, yaitu dengan mengukur serapan yang diakibatkan oleh larutan sampel terhadap sinar yang sama. Sehingga didapatkan hubungan yang linier antara serapan (**A**) dengan konsentrasi (**c**), tebal kuvet (**b**) dan koefisien absorpsi (**a**);

$$A = a \times b \times c \quad (2.5)$$

BAB III

METODOLOGI PENELITIAN

Metodologi pada penelitian ini terdiri atas empat tahap, yaitu proses *leaching* kaolin, sintesis sodalit, karakterisasi material dan aplikasi sodalit untuk adsorpsi ion Pb^{2+} . Metode *leaching* kaolin merujuk pada penelitian Li dkk., (2015), sedangkan metode sintesis sodalit merujuk pada penelitian Wahyuni, (2015) dengan rasio Molar Si/Al sesuai penelitian Zaman (2015) dimana perbandingan rasio molar yaitu $3 Na_2O : 1,5 SiO_2 : Al_2O_3 : 128 H_2O$.

3.1 Alat dan Bahan

3.1.1 Alat

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini dikelompokkan menjadi dua, yaitu peralatan untuk sintesis sodalit dan instrumen untuk karakterisasi sampel padatan hasil sintesis. Peralatan yang digunakan untuk sintesis sodalit antara lain kaca alroji, gelas beker, gelas ukur, erlenmeyer, pipet tetes, spatula, corong, kertas saring, neraca analitik, *hotplate*, *magnetic stirrer*, botol polipropilen (pp), oven, kertas pH sebagai indikator universal. Adapun instrument yang digunakan karakterisasi sampel sampel padatan hasil sintesis yaitu XRD (*X-Ray Diffraction Expertpro Panalytical*), FTIR (Fourier Transform Infrared) Shimadzu *Spektrum One 8400S*, instrument SEM-EDX (*Scanning Electron Microscopy – Energy Dispersive X-Ray*) : SEM (ZEISS EVO MA 10) dan EDX (BRUKER 129 EV), serta instrument AAS (*Atomic Absorption Spectrometer*) (SHIMADZU AA 6800).

3.1.2 Bahan

Bahan yang digunakan pada penelitian ini antara lain: kaolin dari Bangka-Belitung ($Al_4(Si_4O_{10})(OH)_8$, (54% SiO_2 dan 22% Al_2O_3), air demineralisasi (aquademin), asam sulfat (H_2SO_4) (SAP Chemical, 98%), natrium hidroksida (NaOH) (SAP Chemical, 98%), natrium aluminosilikat anhidrat ($NaAl_2O_3$) (Aldrich, Na_2O 40-45%, Al_2O_3 50-56%), timbal nitrat $Pb(NO_3)_2$ (March,99%).

3.2 Prosedur Penelitian

3.2.1 Proses *Leaching* Kaolin

Larutan asam sulfat $1,5 \text{ mol.L}^{-1}$ sebanyak 100 mL dimasukkan ke dalam botol polipropilen. Selanjutnya ditambahkan 10 gram kaolin dan diaduk selama 2 jam pada suhu 80°C (Li dkk., 2015). Campuran disaring dan dicuci dengan aquademin, lalu dikeringkan di oven pada suhu 100°C selama 24 jam. Padatan yang telah kering ditimbang dan dikarakterisasi dengan instrumen XRD, FTIR dan SEM-EDX.

3.2.2 Sintesis Sodalit

Preparasi dilakukan dengan menambahkan NaOH pelet sebanyak 9,6 gram dimasukkan ke dalam botol polipropilen (pp) dan dilarutkan dengan aquademin sebanyak 149 gram selanjutnya diaduk sampai NaOH larut. Sebanyak 3 gram kaolin dicampurkan dan diaduk selama 15 menit. Natrium aluminat sebanyak 10,438 gram ditambahkan dan diaduk pada suhu ruangan selama 6 jam. Selanjutnya, campuran tersebut dihidrotermal pada suhu 100°C dengan variasi waktu hidrotermal yaitu 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36, 48 jam. Kemudian botol polipropilen didinginkan dengan aliran air. Padatan hasil sintesis dipisahkan dari filtratnya dengan filtrasi. Selanjutnya padatan dicuci dengan aquademin sampai pH 8-9 dan dikeringkan pada suhu 100°C selama 24 jam. Padatan yang telah kering ditimbang dan dikarakterisasi dengan instrumen XRD, FTIR, dan SEM-EDX.

3.2.3 Aplikasi Sodalit untuk Adsorpsi Ion Pb^{2+}

Produk hasil sintesis yang terbaik diuji untuk adsorpsi ion Pb^{2+} menggunakan metode batch (Li dkk., 2015). Mula-mula dibuat larutan Pb^{2+} dengan konsentrasi 500 ppm melalui pelarutan padatan $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ sebanyak 0,799 gram ke dalam 1 liter akuademin yang menghasilkan larutan Pb^{2+} dengan konsentrasi 500 ppm dan menjadi larutan Pb^{2+} induk. Larutan Pb^{2+} dikarakterisasi dengan AAS untuk mengetahui konsentrasi Pb^{2+} awal. Larutan Pb^{2+} induk diambil sebanyak 200 mL dimasukkan ke dalam beker gelas dan ditambah dengan 0,05 gram sampel hasil terbaik. Campuran antara larutan Pb^{2+} dengan sampel hasil terbaik di stirer selama 24 jam dengan kecepatan 150 rpm pada suhu ruangan dan beaker gelas ditutup

dengan aluminium foil. Pengambilan larutan sampel Pb pada waktu 20, 30, 50, 80, 120, 170, 230, 300, 480, 720, 1440 menit dengan setiap pengambilan larutan sampel Pb²⁺ diambil sebanyak 10 mL. Larutan sampel Pb yang diambil sebanyak 10 mL disaring selanjutnya filtratnya dianalisa dengan AAS. Jumlah Pb teradsorp dihitung menggunakan persamaan sebagai berikut:

$$\text{Jumlah Pb teradsorp} = \frac{([C]_0 - [C]_e)V}{m} \times 100 \quad (3.1)$$

(Li dkk., 2015)

Nilai [C]₀ adalah konsentrasi Pb²⁺ awal dalam larutan (mg/L); [C]_e adalah konsentrasi Pb²⁺ akhir dalam larutan (mg/L), V adalah volume larutan Pb²⁺ (L), m adalah massa adsorben (gram).

3.3 Instrumentasi

3.3.1 Difraksi Sinar-X

Padatan dianalisis dengan difraksi sinar X. *X-ray Diffractometer* (XRD) menggunakan radiasi Cu K α ($\lambda = 1.54056\text{\AA}$) pada 40 kV dan 30 mA. Analisis dilakukan pada sudut $2\theta = 5-50^\circ$ dengan kecepatan *scanning* 0,04°/detik. Tingkat kristalinitas dihitung dengan menggunakan difraktogram XRD sodalit tertinggi sebagai referensi dengan membandingkan beberapa puncak.

Hasil karakterisasi difraksi sinar-X digunakan untuk menentukan kristalinitas padatan dan ukuran partikel. Kristalinitas sampel ditentukan pada difraksi puncak: 14,16° (1 1 0), 24,65° (2 1 1), 31,99° (3 1 0), 35,13° (2 2 2), 43,39° (4 1 1). Kristalinitas dihitung dengan rumus sebagai berikut:

$$\% \text{ kristalinitas} = \frac{\text{jumlah total intensitas relatif sampel}}{\text{jumlah total intensitas relatif standar}} \times 100 \quad (3.2)$$

(Rayalu dkk., 2005)

Ukuran partikel rata-rata ditentukan menggunakan persamaan Sherrer pada puncak difraksi 24,65 ° (2 1 1).

$$d = \frac{0.9 \lambda}{B \cos \theta} \quad (3.3)$$

$$B^2 = B_M^2 - B_S^2 \quad (3.4)$$

d merupakan ukuran partikel kristal (nm). λ merupakan panjang gelombang (0,154 nm). θ merupakan sudut Bragg. B (FWHM) merupakan lebar puncak, dihitung dari lebar setengah puncak pada difraksi puncak 2 1 1 (Hiyoshi, 2012). B_M merupakan lebar puncak (radian) pada setengah tinggi puncak dan B_S merupakan lebar puncak dari material standar (West, 1984).

3.3.2 Spektroskopi Inframerah (FTIR)

Padatan hasil sintesis dikarakterisasi dengan FTIR. Analisis dilakukan dengan metode pellet KBr dan spektrum diukur pada bilangan gelombang 4000-400 cm^{-1} . Sampel dipreparasi dengan mencampurkan sampel dan KBr, komposisi sampel 1 % terhadap total campuran. Hasil spektra inframerah dapat digunakan untuk mengidentifikasi gugus fungsi dalam material, menentukan komposisi campuran, dan membantu memberikan informasi dalam memperkirakan struktur molekul.

3.3.3 Scanning Electron Microscopy - Energy Dispersive X-Ray (SEM – EDX)

Analisis SEM digunakan untuk mengetahui morfologi dari hasil sampel yang telah disintesis dan EDX digunakan untuk mengetahui kandungan unsur yang terdapat pada padatan hasil sintesis. Sebelum dilakukan analisis, sampel terlebih dahulu diletakkan pada alas *carbon tape* dan dilakukan proses coating dengan Au selama 15 menit pada tekanan 6×10^{-2} mBar. Pengamatan selanjutnya dilakukan dengan pemotretan dengan SEM. Kemudian foto SEM dianalisa menggunakan EDX, sehingga menghasilkan foto dengan kandungan serta persebaran unsur – unsurnya.

3.3.4 Atomic Absorption Spectrometer (AAS)

Larutan Pb^{2+} 500 ppm induk dianalisis dengan AAS untuk menentukan konsentrasi Pb^{2+} awal. Adapun filtrat yang didapatkan dari pencampuran antara larutan Pb^{2+} 500 ppm dengan sodalit dikarakterisasi dengan AAS untuk mengetahui konsentrasi Pb^{2+} akhir.

BAB 4

HASIL DAN PEMBAHASAN

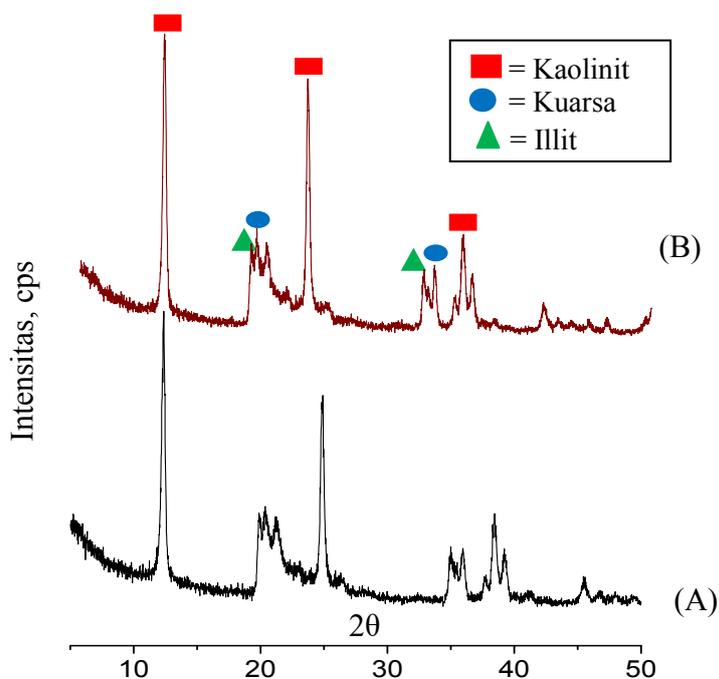
Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis sodalit menggunakan kaolin yang berasal dari Bangka Belitung. Sodalit disintesis dari kaolin yang sudah di-*leaching* menggunakan asam sulfat (H_2SO_4) 5 M. Kaolin hasil *leaching* digunakan sebagai sumber silika dan alumina serta penambahan natrium aluminat sebagai sumber alumina tambahan. *Leaching* bertujuan untuk mengurangi kadar besi (Fe) pada kaolin (K) untuk meningkatkan rasio mol silika dan alumina. Sintesis sodalit dilakukan dengan metode hidrotermal pada suhu $100\text{ }^\circ\text{C}$ pada variasi waktu kristalisasi 1-48 jam. Padatan hasil sintesis dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X (XRD), spektroskopi inframerah (IR) dan *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX). Padatan hasil sintesis diaplikasikan untuk mengadsorpsi ion logam Pb^{2+} .

4.1 Karakterisasi Kaolin dan Kaolin Hasil *Leaching*

Leaching kaolin dengan H_2SO_4 5M pada penelitian ini sesuai dengan metode yang telah dilaporkan Li dkk., (2015) bertujuan untuk menghilangkan pengotor dari kaolin, terutama Fe. Kaolin sebelum *leaching* berupa padatan putih agak kekuningan, setelah perlakuan padatan berwarna putih. Hasil tersebut menunjukkan bahwa pengotor yang terdapat pada kaolin telah hilang.

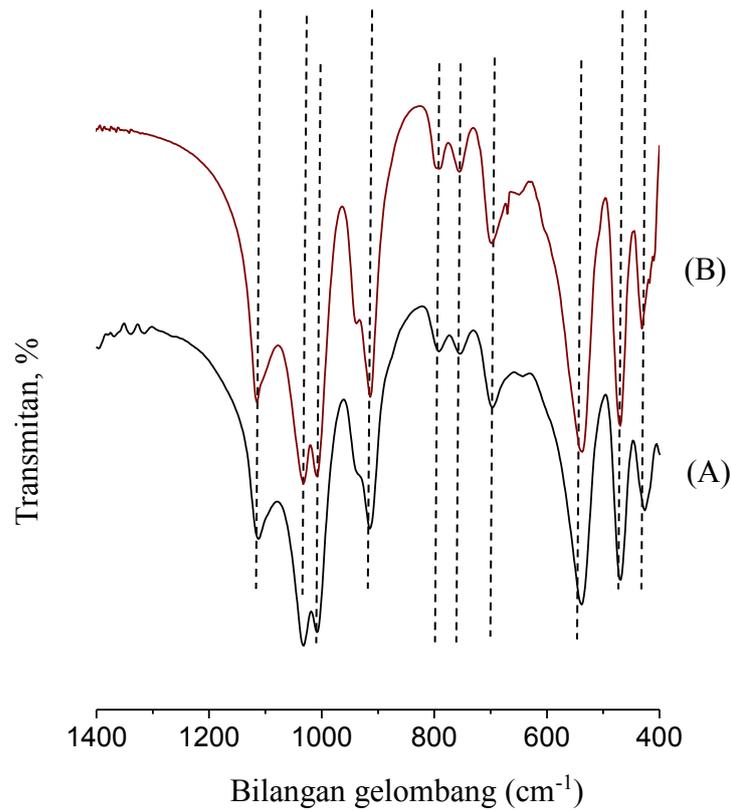
Kaolin dan kaolin hasil *leaching* dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X (XRD) untuk mengetahui fasa yang terdapat pada kaolin dan kaolin hasil *leaching*. Karakterisasi dilakukan pada rentang sudut 2θ $5\text{-}50^\circ$, menggunakan sinar-X Cu $K\alpha$ dengan panjang gelombang (λ) = $1,54056\text{ \AA}$. Gambar 4.1. menunjukkan pola difraktogram kaolin dan kaolin hasil *leaching* yang menunjukkan hasil yang sama. Fasa yang terbentuk pada kaolin tetap ditemukan pada kaolin hasil *leaching* yaitu kaolinit, illit, kuarsa. Hasil ini serupa dengan penelitian yang dilakukan oleh Kahraman dkk.. (2005) bahwa kaolin terdiri fasa kaolinit ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) yaitu pada $2\theta = 12,52^\circ$, $25,48^\circ$ dan $38,3^\circ$, fasa kuarsa (SiO_2) pada $2\theta = 20,99^\circ$ dan $26,77^\circ$.

Pada $2\theta = 20,10^\circ$ dan $35,35^\circ$ menurut database JCPDS (2001) terdapat fasa illit [$K_x(Al,Mg)_4(Si,Al)_8O_{20}(OH)_4.nH_2O$, dengan $x < 1$].



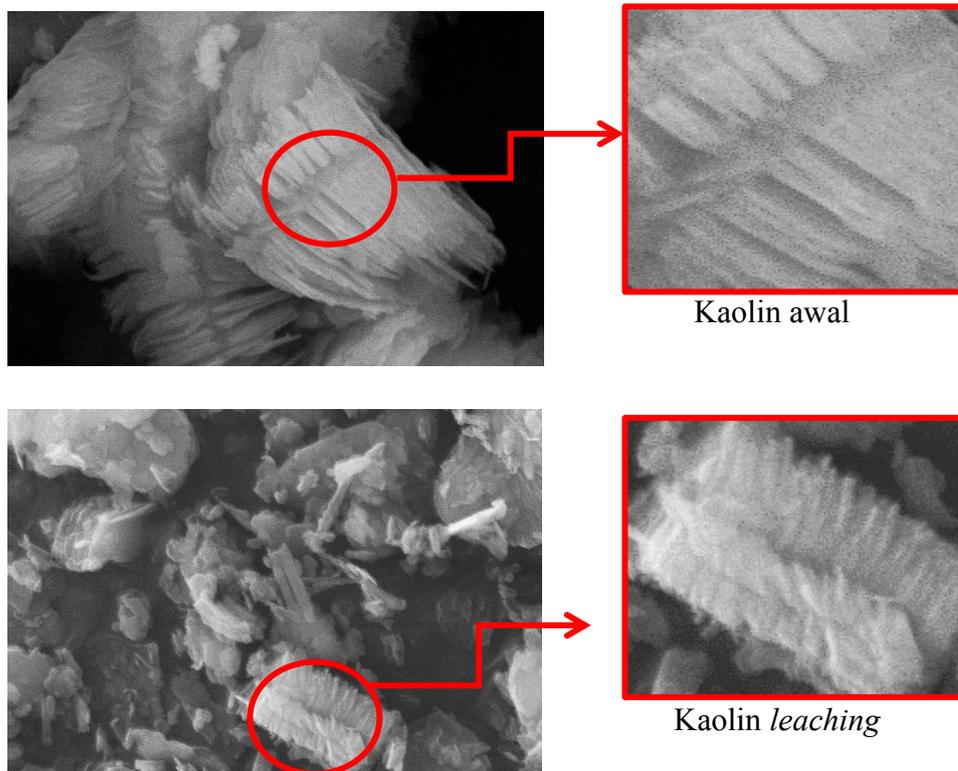
Gambar 4.1 Pola difraktogram sinar-X, (A) kaolin, (B) kaolin hasil *leaching*

Gambar 4.2 menunjukkan spektra FTIR dari kaolin dan kaolin hasil *leaching*. Berdasarkan hasil karakterisasi tersebut, ditunjukkan bahwa kaolin dan kaolin hasil *leaching* memiliki puncak serapan pada bilangan gelombang yang sama. Spektra kaolin menunjukkan puncak serapan pada bilangan gelombang 429, 468, 536, 698, 754, 789, 912, 937, 1006, 1031 dan 1114 cm^{-1} . Menurut Chandrasekar (1996) puncak serapan kaolin yang muncul pada bilangan gelombang 540 cm^{-1} menunjukkan vibrasi ikatan Al-O pada $Al[O(OH)]_6$ sedangkan pada bilangan gelombang 430, 693, 752, 794, 1035, 1096 dan 1114 cm^{-1} menunjukkan adanya vibrasi ikatan Si-O pada SiO_4 . Alkan dkk (2005) melaporkan bahwa serapan pada bilangan gelombang 1115 dan 1008 cm^{-1} menunjukkan vibrasi Si-O-Si, pada 795 dan 697 cm^{-1} menunjukkan vibrasi Al-O-H sedangkan pada 469 dan 430 cm^{-1} terdapat vibrasi ikatan Si-O.



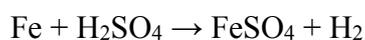
Gambar 4.2 Spektra FTIR pada (A) kaolin, (B) kaolin hasil *leaching*

Karakterisasi menggunakan instrumen SEM bertujuan untuk mengetahui morfologi kaolin dan kaolin hasil *leaching*. Hasil tersebut ditunjukkan pada Gambar 4.3. Berdasarkan Gambar 4.3 terlihat adanya kesamaan morfologi kaolin dan kaolin hasil *leaching* yaitu berupa lembaran (lempengan). Hasil ini sama dengan hasil SEM kaolin yang dilaporkan oleh Lapides dan Heller-Kallai (2007) bahwa morfologi permukaan dari SEM kaolin menunjukkan lembaran dan secara umum berbentuk heksagonal.

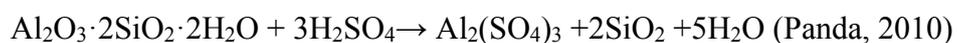


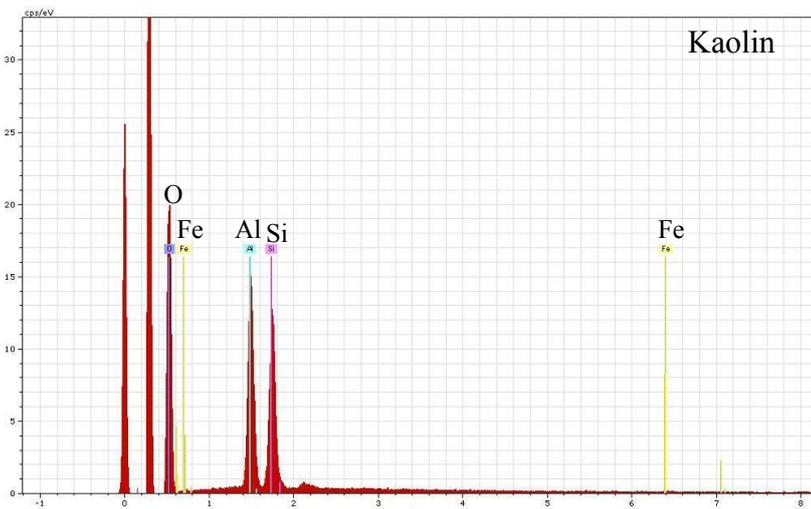
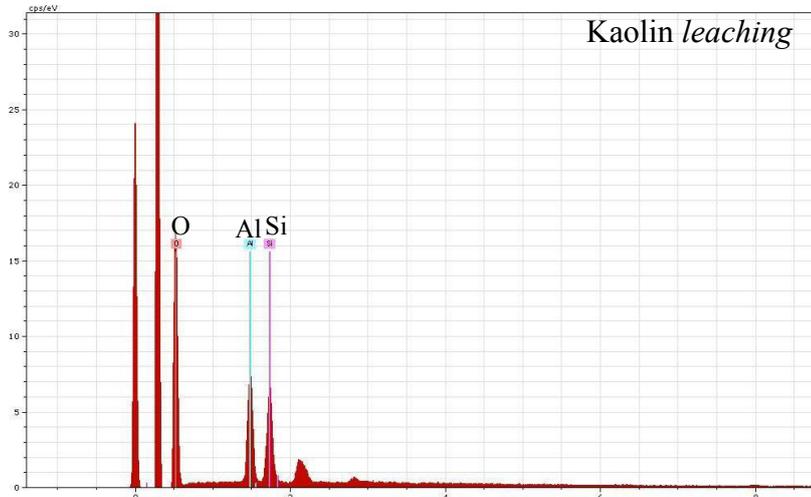
Gambar 4.3 Hasil karakterisasi SEM pada kaolin dan kaolin hasil *leaching*. Karakterisasi EDX dilakukan untuk menentukan komposisi unsur pada kaolin dan kaolin *leaching* Gambar 4.4. Berdasarkan hasil tersebut terlihat bahwa komposisi kaolin terdiri dari Si, Al, O dan Fe sedangkan komposisi kaolin *leaching* yaitu Si, Al, dan O. Hilangnya Fe pada kaolin *leaching* menunjukkan bahwa proses tersebut efektif. Hasil ini, didukung oleh hasil komposisi unsur utama pada kaolin dan kaolin *leaching* Tabel 4.1. Berdasarkan pada Tabel 4.1 tersebut, selain hilangnya Fe juga menunjukkan bahwa terdapat pengurangan alumina pada kaolin yang telah di-*leaching*. Hal ini mengakibatkan peningkatan presentase rasio mol Si/Al pada kaolin *leaching*. Pada penelitian Lindiane dkk (2013) menunjukkan bahwa *leaching* menggunakan asam sulfat lebih efektif menghilangkan Fe daripada HCl maupun HNO₃.

Reaksi antara Fe dengan asam sulfat adalah sebagai berikut :



Sedangkan reaksi kaolin dengan asam sulfat sebagai berikut :





Gambar 4.4 Spektrum EDX kaolin dan kaolin *leaching*

Tabel 4.1 Hasil EDX kaolin dan kaolin *leaching*

Sampel	Kadar unsur (% berat)				mol		Rasio mol Si/Al
	Si	Al	O	Fe	Si	Al	
Kaolin	7,30	9,54	83,01	0,15	0,122	0,176	0,688
Kaolin <i>Leaching</i>	5,45	3,89	90,65	0	0,194	0,072	2,695

4.2 Sintesis Sodalit

Metode sintesis pada penelitian ini mengacu pada penelitian yang dilakukan oleh Wahyuni, 2015. Namun, kaolin yang digunakan oleh Wahyuni tidak melalui proses *leaching* dan waktu kristalisasi yang diperlukan untuk membentuk sodalit pertama kali adalah 6 jam. Sementara itu, penelitian ini dilakukan pemurnian dari kaolin dengan proses *leaching*, sehingga diperoleh waktu proses kristalisasi pembentukan sodalit yang lebih cepat.

Pada penelitian ini, sintesis sodalit menggunakan komposisi mol pereaksi 3 Na₂O: 1,5 SiO₂: Al₂O₃: 128 H₂O (Zaman, 2015). Kaolin digunakan sebagai material utama dan dilakukan variasi waktu kristalisasi antara lain 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36, 48 jam (Wahyuni, 2015) disimbolkan dengan H-1, H-2, H-3, H-6, H-9, H-12, H-24, H-36, H-48. Sintesis sodalit standar dari bahan komersil (Iudox dan natrium aluminat) digunakan sebagai pembanding dan disimbolkan dengan S-standar.

4.3 Karakterisasi Sodalit

Pengaruh variasi waktu kristalisasi terhadap padatan hasil sintesis dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X (XRD) untuk mengetahui fasa padatan yang terbentuk, kristalinitas. Spektroskopi inframerah (IR) untuk mengetahui ikatan antar atom dan vibrasi molekul dari sampel padatan hasil sintesis. *Scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray* (SEM-EDX) untuk mengetahui morfologi serta ukuran partikel dari padatan dan *energy dispersive X-ray* (EDX) untuk analisis komposisi unsur dari padatan hasil sintesis.

4.3.1 Hasil Karakterisasi XRD

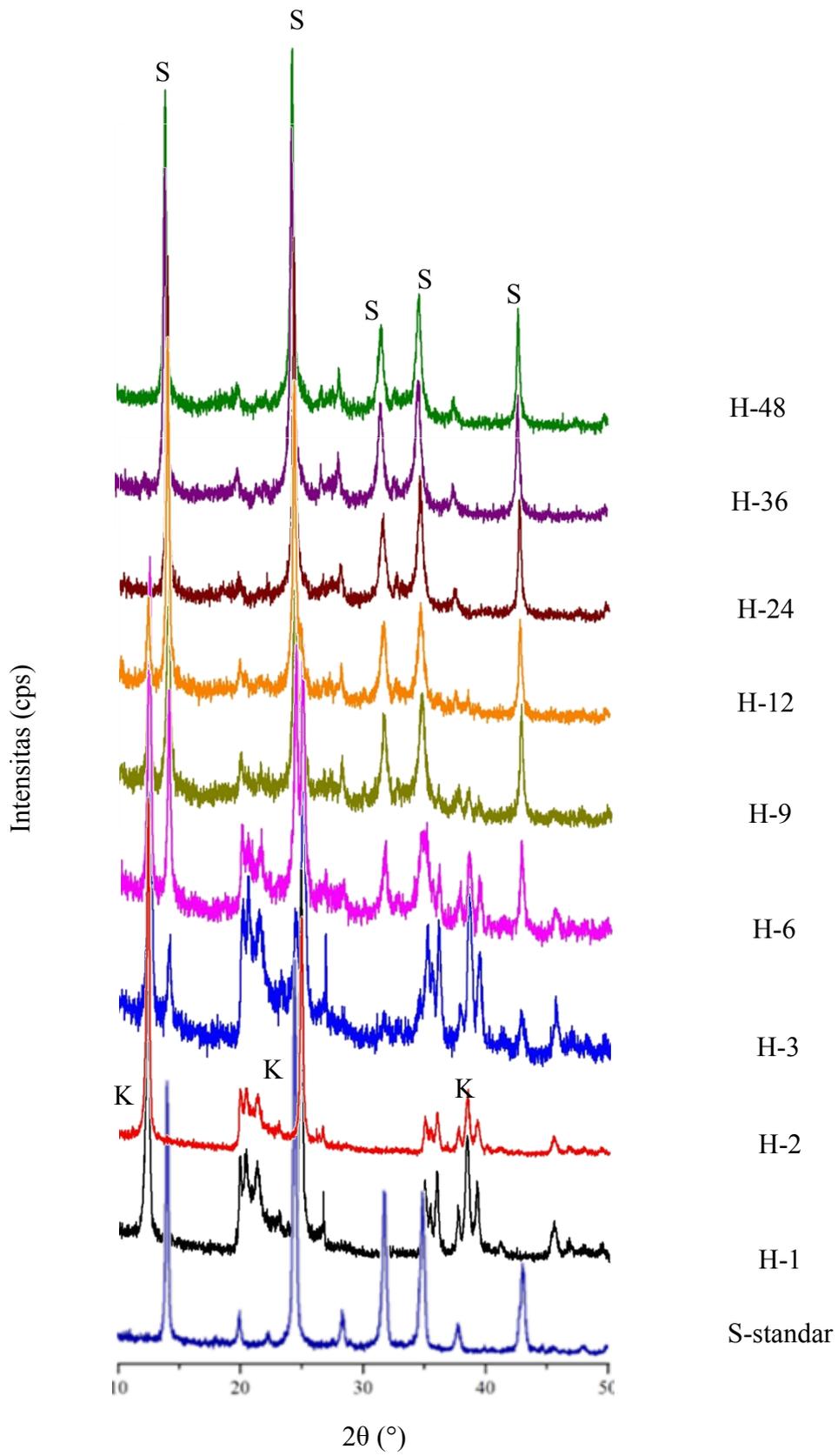
Difraksi sinar-X (XRD) untuk mengetahui fasa padatan yang terbentuk, kristalinitas serta ukuran partikel. Pengaruh waktu kristalisasi terhadap pola difraksi sinar-X ditentukan pada $2\theta = 5-50^\circ$. Pola difraksi sinar-X terhadap variasi waktu kristalisasi ditunjukkan pada Gambar 4.5. Fasa dan produk yang terbentuk ditunjukkan pada Tabel 4.2.

Pada waktu kristalisasi 1 dan 2 jam merupakan kaolin terdiri fasa kaolinit yaitu di $2\theta = 12,30^\circ$, $24,83^\circ$ dan $38,38^\circ$, fasa kuarsa pada $2\theta = 20,33^\circ$ dan $26,64^\circ$,

di $2\theta = 20,33^\circ$ dan $35,89^\circ$ terdapat fasa illit. Pola difraksi pada sampel H-3 menunjukkan terbentuknya fasa baru di $2\theta = 13,94^\circ$; $42,71^\circ$ yang mengindikasikan fasa sodalit. Adapun pada $2\theta = 12,35^\circ$; $24,88^\circ$; $38,43^\circ$ menunjukkan fasa kaolin. Pada penelitian ini, sodalit mulai terbentuk pada waktu kristalisasi 3 jam. Hasil ini menunjukkan sodalit terbentuk lebih awal daripada penelitian yang telah dilakukan Wahyuni (2015) yaitu terbentuk sodalit pada waktu kristalisasi 6 jam. Hal ini dikarenakan kaolin sebagai sumber silika dan alumina untuk sintesis sodalit dilakukan proses *leaching* dengan asam sulfat terlebih dahulu. *Leaching* dapat menghilangkan pengotor salah satunya besi sehingga dihasilkan kaolin yang lebih murni dan meningkatkan rasio Si/Al. Hal itu menyebabkan waktu yang dibutuhkan untuk sintesis sodalit menjadi lebih cepat terbentuk.

Pola XRD pada sampel H-6 menunjukkan intensitas puncak difraksi kaolinit mengalami penurunan dan munculnya puncak difraksi baru mengindikasikan puncak spesifik dari sodalit pada $2\theta = 13,89^\circ$; $31,54^\circ$; $42,69^\circ$ dan fasa kaolinit yang teramati pada $2\theta = 12,30^\circ$; $24,83^\circ$. Pola difraksi pada sampel H-9 menunjukkan intensitas puncak difraksi kaolinit mengalami penurunan dan munculnya puncak difraksi yang mengindikasikan puncak spesifik dari sodalit pada $2\theta = 13,98^\circ$; $24,32^\circ$; $31,62^\circ$; $34,65^\circ$; $42,76^\circ$ dan fasa kaolinit pada $2\theta = 12,39^\circ$. Adapun pola difraksi pada sampel H-12 menunjukkan fasa kaolinit hanya pada $2\theta = 12,32^\circ$, dan munculnya puncak difraksi yang menunjukkan fasa sodalit di $2\theta = 13,91^\circ$; $24,25^\circ$; $31,59^\circ$; $34,59^\circ$; $42,69^\circ$.

Puncak difraksi sodalit H-24 sesuai dengan puncak difraksi pada sampel standar yaitu sudah terbentuk sodalit murni di $2\theta = 13,87^\circ$; $24,21^\circ$; $34,58^\circ$; $42,66^\circ$. Hasil ini sama seperti pola difraksi yang ditunjukkan pada sampel H-36 dan H-48. Hasil pola difraksi pada sampel H-24, H-36 dan H-48 sesuai dengan pola difraksi sampel standar. Hasil tersebut menunjukkan bahwa sodalit murni terbentuk pada waktu kristalisasi 24, 36 dan 48 jam.



Gambar 4.5 Pola difraksi sinar-X dengan variasi waktu kristalisasi 1-48 jam (H-1 sampai H-48); S-Standar (sodalit standar).

Tabel 4.2 Fasa dan produk yang terbentuk

Sampel	Fasa (2θ)		Produk
	Kaolinit	Sodalit	
H-1	12,30°; 20,33°; 24,83°; 35,89°; 36,42° ;38,38°; 45,23°	-	Kaolin
H-2	12,34°; 20,34°; 24,86°; 35,94°; 38,41° ; 45,45°	-	Kaolin
H-3	12,35°; 20,39°; 26,70°; 35,01°; 38,43°	13,94°; 24,88°; 42,71°	Sodalit
H-6	12,30°; 20,37°; 24,89°; 38,41°	13,89°; 24,83°; 31,54°; 42,69°	Sodalit
H-9	12,39°; 24,24°; 24,87°	13,98°; 24,33°; 31,62°; 34,65°; 42,77°	Sodalit
H-12	12,32°	13,92°; 24,25°; 31,59°; 34,59°; 42,68°	Sodalit
H-24	-	13,87°; 24,21°; 28,06°; 31,66°; 34,58°; 42,66°	Sodalit
H-36	-	13,91°; 24,24°; 28,05°; 31,51°; 34,56°; 42,67°	Sodalit
H-48	-	13,92°; 19,84°; 24,25°; 28,07°; 31,52°; 34,61°; 37,46°; 42,69°	Sodalit
H-Standar	-	14,01°; 19,92°; 24,35°; 28,22°; 31,98°; 34,59°; 37,53°; 42,79°	Sodalit

Berdasarkan hasil karakterisasi difraksi sinar-X ditentukan nilai kristalinitas dari sampel padatan hasil sintesis. Nilai kristalinitas diambil dari sampel H-1 sampai H-48 dan sodalit standart yang disintesis dari ludox dan natrium aluminat. Kristalinitas (%) dihitung berdasarkan persamaan (4.1) pada 5 puncak difraksi tertinggi yang menunjukkan puncak difraksi sodalit. Nilai kristalinitas ditunjukkan Tabel 4.3

$$\% \text{ kristalinitas} = \frac{\text{jumlah total intensitas relatif sampel}}{\text{jumlah total intensitas relatif standar}} \times 100 \quad (4.1)$$

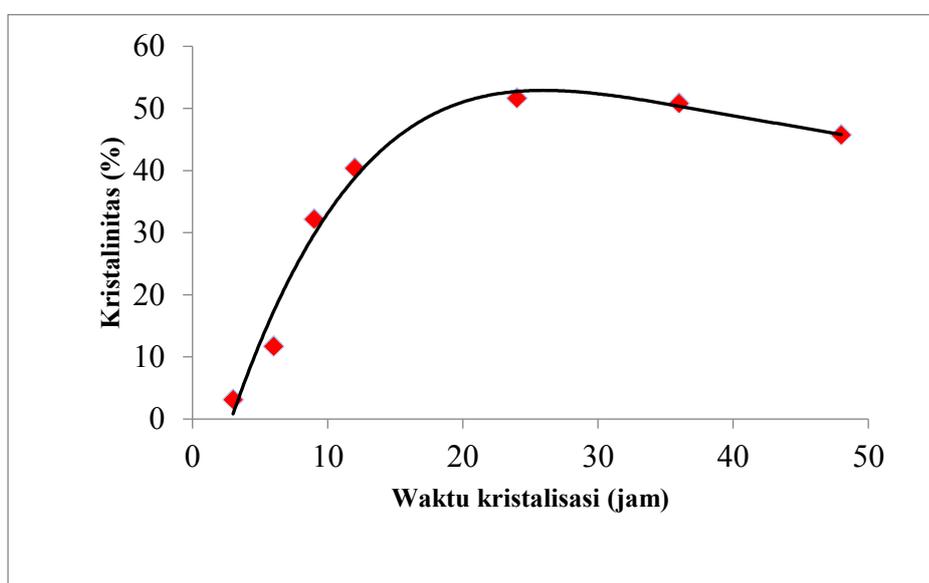
(Rayalu dkk., 2005)

Tabel 4.3 Kristalinitas dari padatan hasil sintesis sodalit

Sampel	Tinggi Puncak (2θ)					Jumlah	Kristalinitas (%)
	14,06	24,48	31,77	34,89	43,08		
Standar	1323,14	1968,75	751,2	740,23	445,49	5228,81	100
H-1	-	-	-	-	-	-	-
H-2	-	-	-	-	-	-	-
H-3	111,24	-	-	-	51,83	163,07	3,11
H-6	349,43	-	120,42	-	142,59	612,44	11,71
H-9	389,99	588,26	223,9	254,33	226,09	1682,57	32,17
H-12	786,61	710,06	176,6	223,71	214,58	2111,56	40,38
H-24	910,84	988,66	201,87	319,96	278,69	2700,02	51,63
H-36	897,94	954,33	210,18	314,03	280,22	2656,7	50,80
H-48	768,54	861,46	200,56	298,69	261,76	2391,01	45,72

Berdasarkan Gambar 4.6 didapatkan hasil bahwa semakin lama waktu kristalisasi maka kristalinitas semakin meningkat. Hal ini dikarenakan semakin meningkatnya waktu kristalisasi maka kecepatan pembentukan dan pertumbuhan inti semakin cepat sehingga kristalinitas menjadi meningkat. Hal tersebut ditunjukkan pada Grafik 4.6 bahwa waktu kristalisasi 1 dan 2 jam belum menunjukkan puncak sodalit yang mengindikasikan bahwa pembentukan dan pertumbuhan inti sodalit belum terjadi. Kristalinitas pada waktu kristalisasi 3, 6, 9,

12, 24, 36, 48 jam mengalami kenaikan yang menunjukkan pertumbuhan dan pembentukan inti sodalit semakin meningkat. Kristalinitas tidak mengalami kenaikan secara signifikan pada waktu kristalisasi 36 dan 48 jam. Hal tersebut menunjukkan bahwa pertumbuhan dan pembentukan inti sodalit pada kondisi yang stabil. Hasil serupa dilaporkan oleh Huang dkk. (2011) bahwa meningkatnya waktu kristalisasi dari 5 sampai 65 jam, puncak difraksi menjadi lebih tajam. Hal ini menunjukkan bahwa semakin lama waktu kristalisasi tidak didapatkan fasa zeolit yang lain sehingga kondisi tersebut sesuai untuk kristalisasi sodalit.



Gambar 4.6 Grafik waktu kristalisasi terhadap kristalinitas (%).

Berdasarkan hasil XRD dapat diketahui bahwa pembentukan fasa, kristalinitas dipengaruhi oleh waktu kristalisasi. Semakin meningkat waktu kristalisasi maka kristalinitas semakin meningkat.

4.3.2 Spektroskopi Inframerah (FTIR)

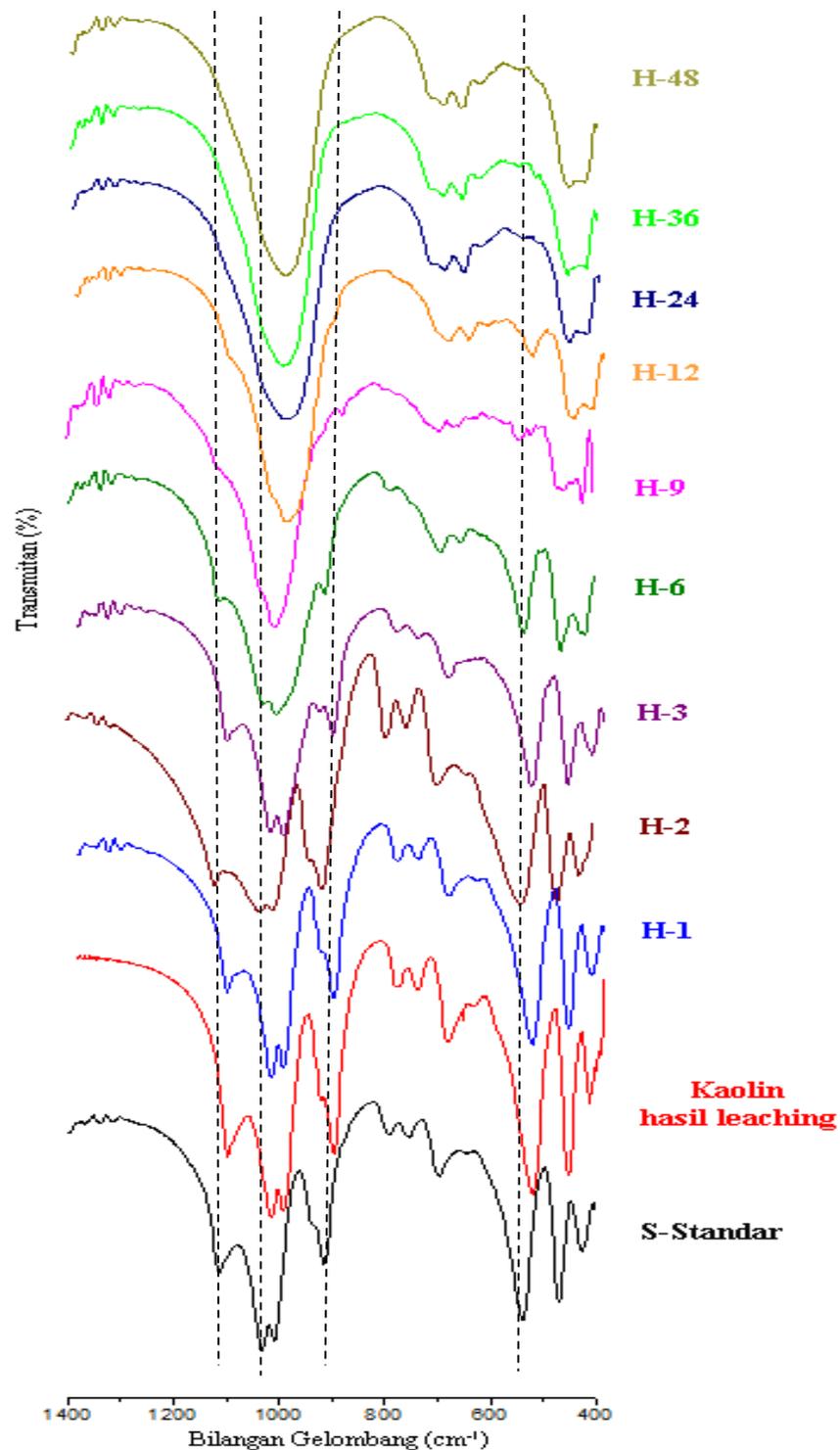
Karakterisasi spektroskopi FTIR digunakan untuk menentukan gugus fungsi dari sampel padatan hasil sintesis. Gambar 4.7 menunjukkan puncak serapan FTIR dari sampel padatan hasil sintesis dengan waktu kristalisasi yang berbeda pada bilangan gelombang 400-1400 cm^{-1} . Bilangan gelombang (cm^{-1}) spektra FTIR

dari kaolin dan padatan hasil sintesis dengan waktu kristalisasi yang berbeda dapat dilihat pada Tabel 4.4.

Spektra FTIR pada sampel kaolin hasil *leaching*, H-1 dan H-2. Gambar 4.7 terlihat bahwa puncak kaolin pada bilangan gelombang 1031 dan 1114 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur Si-O, 912 cm^{-1} merupakan δ (Si-OH), 754 dan 792 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur simetri (Si-O-Si), 698 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (AlO-H), 538 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (Al-O), 429 dan 468 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (Si-O). Hasil serupa dilaporkan oleh Alkan dkk. (2005); Saikia dkk. (2003) yaitu berdasarkan hasil spektra FTIR terlihat bahwa puncak kaolin terdapat pada bilangan gelombang 1008 dan 1116 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur Si-O, 912 cm^{-1} dihasilkan δ (Si-OH), 755 dan 795 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur simetri (Si-O-Si), 697 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (AlO-H), 536-552 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (Al-O), 430 dan 469 cm^{-1} merupakan vibrasi gugus (Si-O).

Puncak-puncak karakteristik kaolin pada bilangan gelombang 429, 468, 536, 698, 754, 789, 912, 937, 1006, 1031 dan 1114 cm^{-1} semakin berkurang intensitasnya dengan pertambahan waktu kristalisasi dari bilangan pada sampel H-24. Hal ini menunjukkan bahwa fasa kaolin masih ada pada sampel dengan waktu kristalisasi selama 12 jam dan telah larut semua pada sampel dengan waktu kristalisasi selama 24 jam. Hasil spektra IR ini mendukung hasil karakterisasi XRD yang menunjukkan bahwa sodalit murni terbentuk setelah waktu kristalisasi selama 24 jam.

Sampel S-standar (sodalit standar) merupakan sampel yang digunakan sebagai pembandingan terhadap padatan hasil sintesis. Sampel S-standar disintesis dari bahan komersil yaitu ludox dan natrium aluminat. Spektra FTIR pada sampel S-standar menunjukkan spektra FTIR dari sodalit.



Gambar 4.7 Spektra FTIR dari padatan hasil sintesis dengan variasi waktu kristalisasi 1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36, 48 jam (H-1 sampai H-48); kaolin hasil *leaching* dan S-standar.

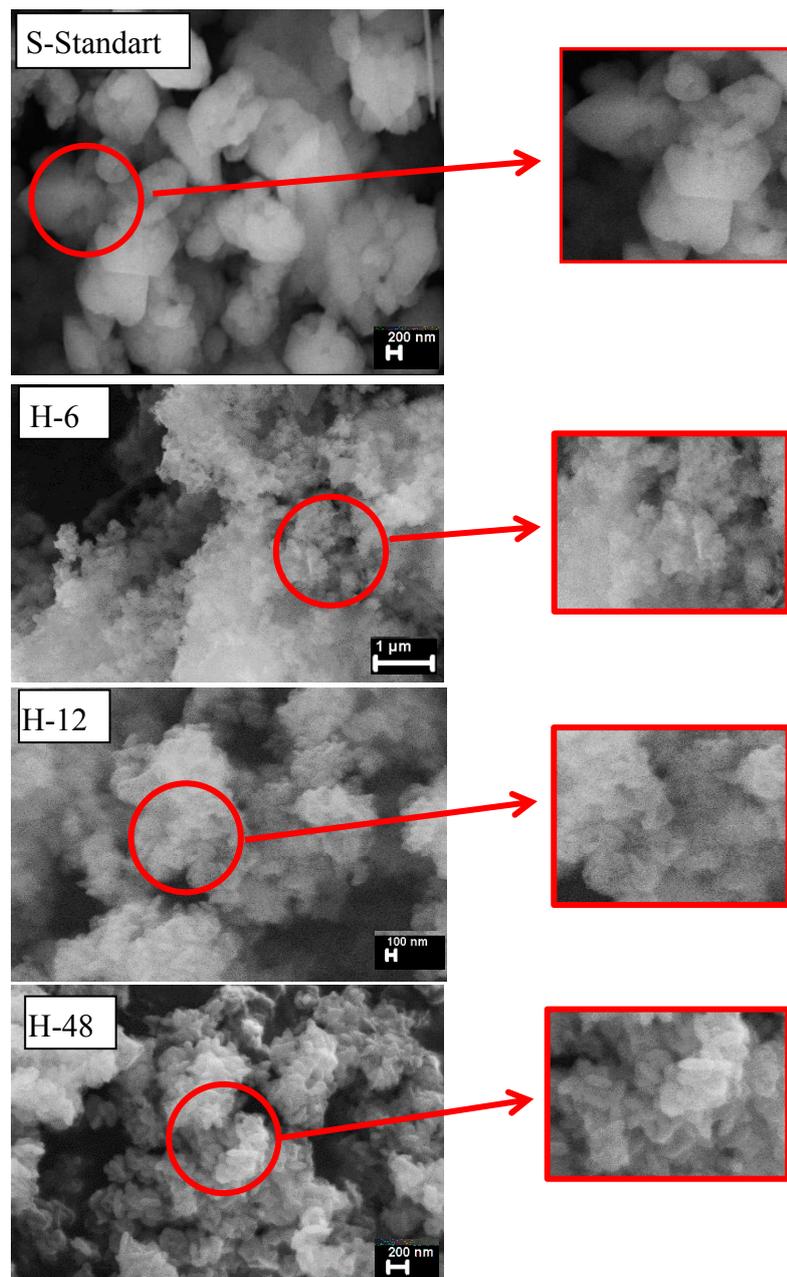
Tabel 4.4 Bilangan gelombang (cm⁻¹) spektra FTIR dari kaolin dan padatan hasil sintesis dengan waktu kristalisasi yang berbeda

Kode	Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)											Keterangan
	Sampel											
	KL	H-1	H-2	H-3	H-6	H-9	H-12	H-24	H-36	H-48	S-standar	
A	429	424	428	422	422	420	424	424	422	426	432	< 430 cm ⁻¹ [perubahan bentuk (Si-O)], > 430 cm ⁻¹ [vibrasi tekuk O-T-O (T = Si atau Al) dan cincin 4 tunggal dari sodalit (S4R)]
B	468	468	468	468	468	457	457					perubahan bentuk (Si-O)
C								459	457	455	462	vibrasi tekuk O-T-O (T = Si atau Al)
D	536	538	538	538	538	542	536					perubahan bentuk (Al-O)
E		640	640		657	655	657	657	657	659	661	vibrasi ulur simetri T-O-T (T = Si atau Al)
F	698	694	698	694	694	692	694	694	692			perubahan bentuk (AlO-H)
G									715	713	729	vibrasi ulur simetri T-O-T (T = Si atau Al)
H	754	754	754	752								vibrasi ulur simetri (Si-O-Si)
I	789	792	792	790	788							vibrasi ulur simetri (Si-O-Si)
J	912	912	912	914	914	914						δ (Si-OH)
K	937	975	976	939								vibrasi ulur untuk semua tipe zeolit
L									993	993	981	vibrasi ulur asimetri T-O-T (T = Si atau Al)
M	1006	1006	1006	1006	1004	1003	1003	991				vibrasi ulur asimetri untuk T-O (T = Si atau Al)
N	1031	1031	1031	1031	1030	1027						vibrasi ulur Si-O
O	1114	1114	1116	1112	1112							vibrasi ulur Si-O

4.3.3 SEM-EDX

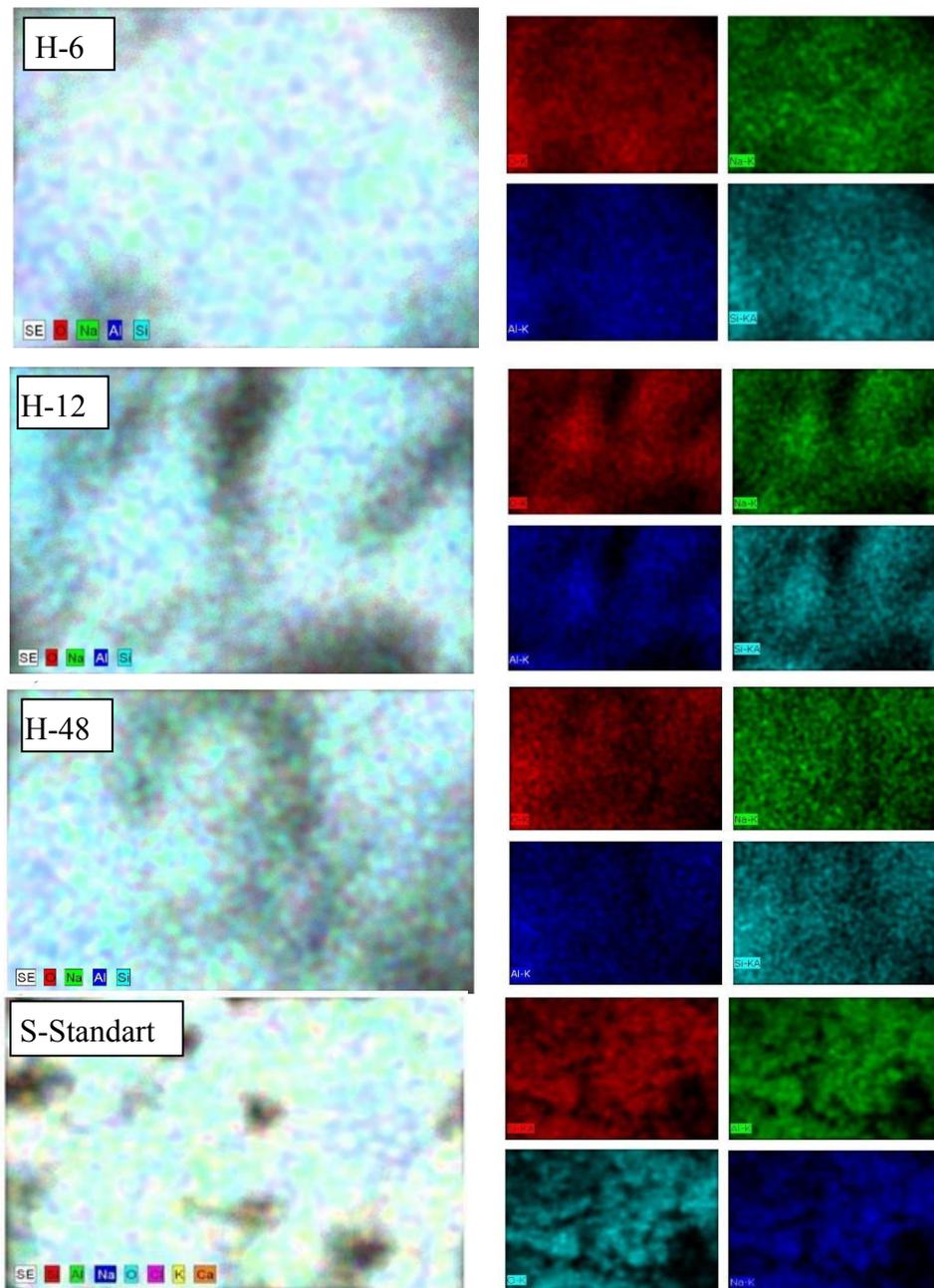
Karakterisasi SEM untuk menentukan morfologi permukaan dan ukuran partikel dari suatu padatan. SEM dilengkapi dengan EDX untuk menentukan komposisi unsur, memetakan distribusi unsur serta menentukan rasio komposisi Si/Al. Sampel-sampel yang dikarakterisasi dengan SEM mengacu pada hasil karakterisasi XRD yang memiliki fasa sodalit yaitu sampel H-6, H-24, H-48 dan standart yang digunakan sebagai pembandingan terhadap sampel padatan hasil sintesis. Morfologi permukaan sampel padatan ditunjukkan pada Gambar 4.8.

Berdasarkan Gambar 4.8 dapat dilihat bahwa sampel S-standar yang disintesis dari bahan komersil (ludox dan natrium aluminat) membentuk agregat dengan ukuran partikel 450-1000 nm sebagaimana juga telah dilaporkan oleh Wahyuni (2015). Morfologi sampel H-6, H-24, dan H-48 menunjukkan morfologi permukaan yang serupa dengan sampel S-standar, dimana terbentuk agregat dengan ukuran masing-masing sekitar 100-200 nm, tetapi morfologi permukaan dari ketiga sampel tersebut tampak lebih kecil jika dibandingkan dengan sampel S-standar. Sampel H-6 berupa partikel kecil dengan bentuk tidak beraturan. Sedangkan sampel H-24 dan H-48 berbentuk partikel menyerupai sampel sodalit standart.



Gambar 4.8 Morfologi dari sampel S-standar (sodalit standar), H-6, H-24, H-48 (waktu kristalisasi 6, 24, 48 jam).

Mapping SEM-EDX pada Gambar 4.9 dapat menggambarkan distribusi komposisi unsur pada sodalit hasil sintesis. Gambar 4.9 menunjukkan adanya distribusi unsur Na, Si, O dan Al yang tersebar secara merata pada sampel H-6, H-24, dan H48. Distribusi masing-masing unsur tersebut menggambarkan persentase masing-masing unsur yang mengacu pada hasil analisis EDX.



Gambar 4.9 Spektrum EDX sampel H-6, H-24, H-48 dan S-Standar.

Teknik EDX untuk menentukan komposisi unsur pada sampel H-6, H-24, H-48 dan S-Standar digunakan sebagai pembandingan. Hasil EDX menunjukkan bahwa sampel H-6, H-24, H-48, S-Standar terdiri dari unsur yang digunakan sebagai prekursor yaitu Si, Al dan Na. Hasil EDX sampel H-6, H-24, H-48, S-Standar ditunjukkan pada Tabel 4.5. Berdasarkan Tabel 4.5 dapat dilihat bahwa

rasio Si/Al sampel H-6, H-24, H-48 berturut-turut sebesar 0,370; 0,372 dan 0,495. Rasio Si/Al padatan hasil sintesis mengalami peningkatan dari sampel H-6 ke sampel H-48. Hasil ini mengindikasikan bahwa sejumlah silika dan aluminium yang larut pada sampel H-6 lebih sedikit dibandingkan dengan sampel H-24, H-48. Sampel H-24, H-48 secara umum menunjukkan bahwa rasio mol Si/Al mengalami peningkatan. Hasil tersebut mengindikasikan bahwa sejumlah silika dan alumina yang larut semakin meningkat seiring dengan peningkatan waktu kristalisasi.

Tabel 4.5 Hasil EDX produk hasil sintesis

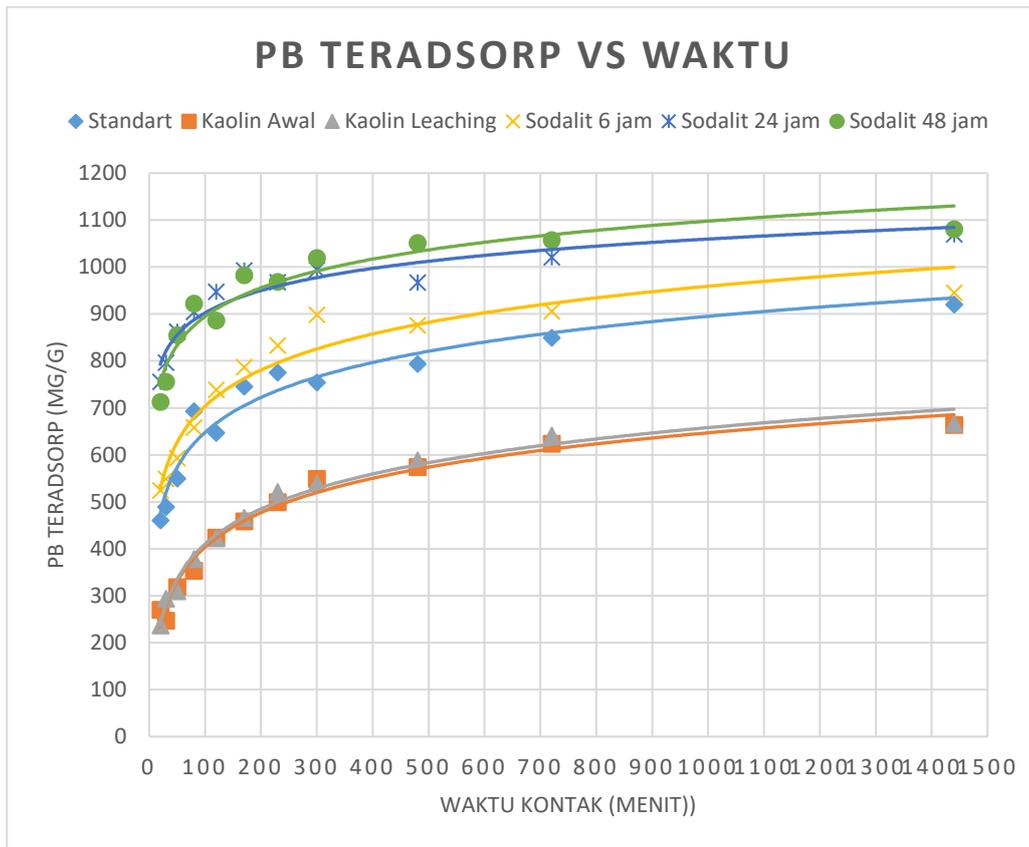
SAMPEL	KADAR UNSUR (% BERAT)			RASIO Si/Al
	Si	Al	Na	
S-Standart	4,27	5,69	11,96	0,360
H-6	7,88	10,22	8,58	0,370
H-24	4,49	5,79	8,99	0,372
H-48	18,11	18,29	15,13	0,495

4.3.4 Aplikasi Sodalit untuk Adsorpsi Ion Pb²⁺

Pada penelitian ini, padatan hasil sintesis yaitu sodalit dilakukan uji adsorpsinya untuk mengetahui sifat adsorpsinya pada kondisi yang optimal. Padatan hasil sintesis yang digunakan yaitu padatan hasil sintesis pada variasi waktu kristalisasi 6, 24 jam dan 48 jam. Selain itu, uji adsorpsi juga dilakukan pada kaolin awal dan kaolin hasil *leaching* sebagai pembandingan. Metode yang digunakan untuk mengetahui sifat adsorpsinya yaitu menggunakan metode batch.

Berdasarkan hasil AAS, didapatkan data konsentrasi Pb²⁺ awal dan konsentrasi Pb²⁺ setiap waktu pengambilan pada waktu kontak tertentu. Berdasarkan hasil konsentrasi Pb²⁺ tersebut dihitung jumlah Pb²⁺ yang teradsorp. Gambar 4.10 menunjukkan jumlah Pb²⁺ yang teradsorb dari sampel S-standar, Kaolin awal, Kaolin L, H-6, H-24, dan H-48. Nilai kapasitas adsorpsi masing-masing sampel dapat dilihat pada Tabel 4.6. Perhitungan jumlah Pb²⁺ yang teradsorp menggunakan persamaan berikut.:

$$\text{Jumlah Pb teradsorp} = \frac{(C_0 - C_e) V}{m} \times 100 \quad (\text{Li dkk., 2015})$$



Gambar 4.10 Jumlah Pb yang teradsorp pada sampel S-standar, Kaolin awal, Kaolin *Leaching*, H-6, H-24, dan H-48.

Berdasarkan Gambar 4.10 terlihat bahwa jumlah Pb^{2+} yang teradsorp pada sampel S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 memiliki pola yang serupa. Jumlah Pb^{2+} yang teradsorp mengalami kenaikan seiring dengan semakin lamanya waktu kontak antara adsorben dan adsorbat. Grafik terlihat tajam saat antara waktu kontak 0-20 menit. Kapasitas adsorpsi untuk S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 pada waktu kontak 20 menit berturut-turut sebesar 460,48; 269,84; 236,45; 524,18; 755,44; dan 712,97 mg/g dengan persentase adsorpsi 23,02; 13,49; 11,82; 26,01; 37,77; dan 35,65%. Hal ini mengindikasikan jumlah Pb^{2+} yang teradsorb relatif banyak dan berlangsung dengan cepat. Jumlah Pb^{2+} yang teradsorp mengalami kenaikan yang cukup signifikan dari waktu kontak pada menit ke 20 hingga menit ke 480. Kapasitas adsorpsi untuk S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 pada waktu kontak 480 menit berturut-turut sebesar 793,42; 573,84; 588,17; 875,91; 966,84; dan 1051,49 mg/g dengan persentase adsorpsi 39,67; 28,69; 29,41; 43,79; 48,43; dan 52,57%. Hal ini dapat dilihat pada grafiknya yang tidak terlalu landai.

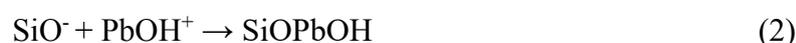
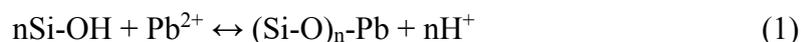
Jumlah Pb^{2+} yang teradsorp pada menit ke 480 hingga menit ke 1440 tidak mengalami kenaikan yang signifikan. Hal ini diindikasikan dengan grafik yang landai pada rentang menit tersebut. Hasil tersebut mengindikasikan jumlah Pb yang teradsorp mulai berada pada kondisi yang konstan.

Berdasarkan perhitungan kapasitas adsorpsi, dapat terlihat bahwa semua sodalit hasil sintesis memiliki kapasitas adsorpsi yang tinggi. Kapasitas adsorpsi untuk sampel S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 berturut-turut dapat mencapai 919,65; 663,89; 666,10; 945,24; 1069,35 dan 1080,76 mg/g. Kapasitas adsorpsi paling tinggi dapat mencapai 1080,76 mg/g untuk sampel H-48. Kapasitas adsorpsi sodalit pada penelitian ini lebih besar jika dibandingkan dengan penelitian Wahyuni (2015), yaitu 97,15 mg/g. Hal ini berarti sodalit hasil sintesis memiliki performa yang baik untuk aplikasi adsorpsi Pb^{2+} .

Berdasarkan data diatas menunjukkan bahwa jumlah Pb yang teradsorp pada penelitian ini lebih banyak dibandingkan dengan penelitian yang dilakukan oleh Yu dkk. (2014) yang menggunakan sodalit pellet dan karbon teraktivasi untuk mengadsorp logam Pb^{2+} . Yu dkk. (2014) melaporkan bahwa kapasitas adsorpsi Pb^{2+} dari sodalit pellet sebesar 10 mg/g. Jumlah Pb yang teradsorp pada karbon teraktivasi lebih rendah dibandingkan jumlah Pb yang teradsorp pada sodalit pellet. Berdasarkan hasil tersebut menunjukkan bahwa produk hasil sintesis pada penelitian ini memiliki kecepatan adsorpsi yang lebih cepat dibandingkan dengan penelitian yang dilakukan oleh Yu dkk. (2014).

Qiu dan Zheng (2009) melaporkan bahwa pengambilan kation pada logam berat berkaitan dengan proses pertukaran kation antara kation pada logam dan kation pada kerangka zeolit. Adsorpsi pada kation logam merupakan reaksi yang terjadi di permukaan antara muatan positif pada kation logam dengan muatan negatif pada permukaan zeolit. Pada penelitian ini, logam berat yang digunakan adalah Pb^{2+} dan kation yang berperan pada kerangka sodalit adalah ion Na^+ . Berdasarkan pada penjelasan Qiu dan Zheng (2009) maka proses pertukaran kation pada penelitian ini yaitu terjadi antara ion Na^+ di kerangka sodalit dengan ion Pb^{2+} . Berdasarkan hasil perhitungan jumlah Pb^{2+} yang teradsorb menunjukkan bahwa ion Pb^{2+} mampu mengganti ion Na^+ di kerangka sodalit melalui proses pertukaran kation dan proses adsorpsi di permukaan sodalit.

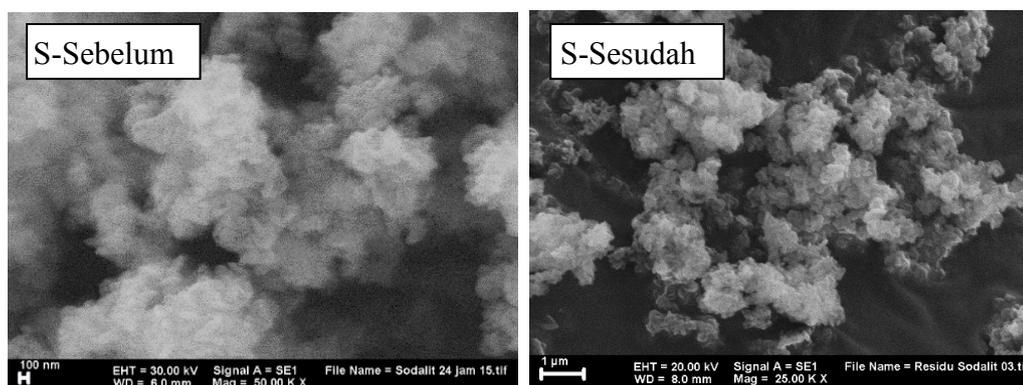
Adapun mekanisme pertukaran ion Na^+ dengan ion Pb^{2+} ditunjukkan melalui mekanisme seperti berikut:



Mekanisme reaksi pada persamaan (1-3) menunjukkan mekanisme reaksi di permukaan adsorben. Adapun persamaan (4) menunjukkan mekanisme reaksi pertukaran ion antara Na^+ dan Pb^{2+} (Qiu dan Zheng, 2009).

Selanjutnya, sampel sodalit yang telah digunakan untuk adsorpsi ion logam Pb^{2+} dikarakterisasi dengan SEM untuk mengetahui bahwa morfologi masih tetap, tidak ada perubahan yang signifikan seperti ditunjukkan pada Gambar 4.11. Berdasarkan tersebut dapat dilihat bahwa sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben membentuk agregat dengan ukuran partikel 100-200 nm.

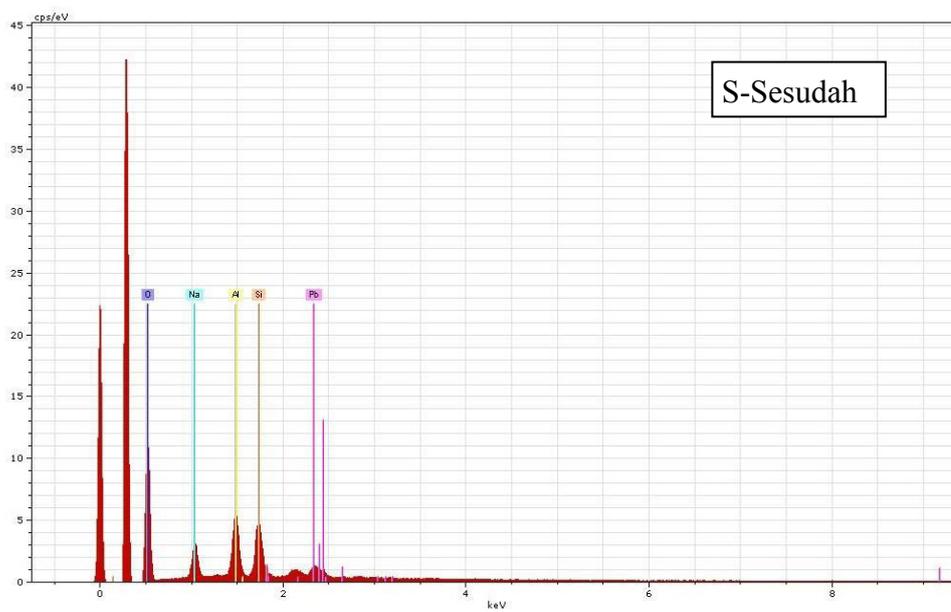
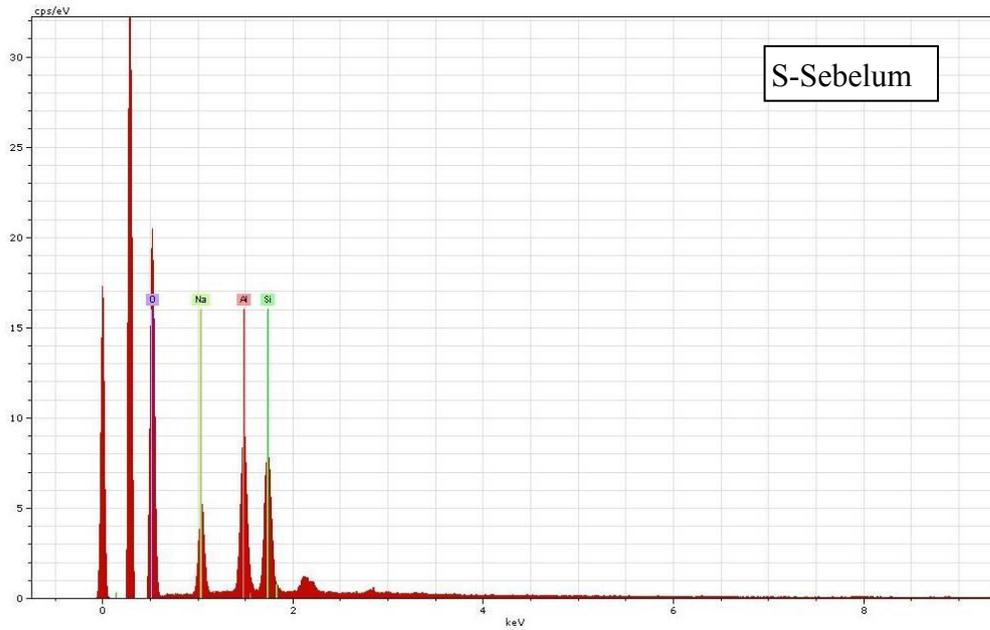
Selain itu juga untuk membuktikan adanya Pb yang teradsorpsi yang dibuktikan dengan data EDX. EDX sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben pada ditunjukkan pada Gambar 4.12 dan Tabel 4.6. berdasarkan gambar tersebut terdapat Pb pada sampel sodalit setelah digunakan sebagai adsorben. Hal itu dikarenakan adanya proses pertukaran kation pada sodalit yaitu terjadi antara ion Na^+ di kerangka sodalit dengan ion Pb^{2+} .



Gambar 4.11 Morfologi dari sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben

Tabel 4.6 Hasil EDX sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben.

SAMPSEL	KADAR UNSUR (% BERAT)				RASIO Si/Al
	Si	Al	Na	Pb	
S-Sebelum	7,88	10,22	8,58	-	0,370
S-Sesudah	4,50	6,50	5,95	19,50	0,332



Gambar 4.12 Spektrum EDX sampel sodalit sebelum dan sesudah digunakan sebagai adsorben.

BAB 5

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Sintesis sodalit dari kaolin yang sudah di-*leaching* menggunakan asam sulfat dipengaruhi oleh waktu kristalisasi. *Leaching* efektif mengurangi kadar besi (Fe) pada kaolin dan meningkatkan rasio mol silika dan alumina. Hal itu menyebabkan waktu yang dibutuhkan untuk sintesis sodalit menjadi lebih cepat terbentuk.

Berdasarkan hasil karakterisasi XRD dan FTIR menunjukkan tidak ada perubahan yang signifikan terhadap sampel kaolin yang sudah di *leaching*. Hasil karakterisasi SEM menunjukkan bahwa kaolin dan kaolin hasil *leaching* memiliki kesamaan morfologi yaitu berupa lembaran (lempengan). Adapun hasil EDX menunjukkan bahwa berkurangnya unsur Fe pada kaolin hasil *leaching* dan rasio Si/Al pada kaolin sebelum dan sesudah *leaching* sebesar 0,688; 2,695.

Berdasarkan hasil karakterisasi XRD dan FTIR menunjukkan bahwa tahap awal pembentukan fasa sodalit pada waktu kristalisasi 3 jam. Adapun sodalit murni terbentuk pada waktu kristalisasi 24 jam dan mengalami kondisi konstan pada waktu kristalisasi 36 dan 48 jam. Nilai kristalinitas untuk sampel pada waktu kristalisasi 12, 24, 36, 48 jam dari hasil XRD sebesar 40,38; 51,63; 50,80; 45,72%. Berdasarkan hasil SEM, pada waktu kristalisasi 6, 24, 48 jam memiliki morfologi yang serupa yaitu membentuk agregat dengan ukuran sekitar 100-200 nm. Adapun dari hasil EDX menunjukkan bahwa rasio Si/Al sebesar 0,370; 0,372; 0,495. Berdasarkan hasil karakterisasi XRD, FTIR dan SEM-EDX dapat disimpulkan bahwa semakin meningkat waktu kristalisasi maka kristalinitas, rasio Si/Al semakin meningkat.

Sampel kaolin sebelum dan sesudah *leaching* serta sodalit pada waktu kristalisasi 6, 24 dan 48 jam dilakukan uji adsorpsi ion Pb^{2+} untuk mengetahui sifat adsorpsinya. Berdasarkan hasil uji sifat adsorpsi untuk ion Pb^{2+} diketahui bahwa kapasitas adsorpsi untuk sampel S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 berturut-turut dapat mencapai 919,65; 663,89; 666,10; 945,24;

1069,35 dan 1080,76 mg/g. Adapun % Pb yang teradsorp untuk sampel dengan waktu kristalisasi 6, 24 dan 48 jam sebesar 47,26%, 53,46% dan 54,04%.

5.2 Saran

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut tentang pengaruh komposisi NaOH, penambahan *structure directing agent* (SDAs) untuk sintesis sodalit. Dan aplikasinya sebagai adsorben berbagai logam berat.

DAFTAR PUSTAKA

- Alkan, M., Hopa., C., Yilmaz., Z., Guler., H., (2005), "The effect of alkali concentration and solid/liquid ratio on the hydrothermal synthesis of zeolite NaA from natural kaolinite", *Microporous and Mesoporous Materials*, 86, 176-184.
- Atta, A. Y., Jibril, B. Y., Aderemi, B. O., Adefila, S. S., (2012), "Preparation of analcime from kaolin and rice hush ash", *Applied Clay Science*, 61, 8-13.
- Breck, D., (1974), "*Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry and Uses*", New York: John Wiley & Sons Inc.
- Buhl, J.C., Schuster, K., Robbeb, L., (2011), " Nanocrystalline sodalite grown from superalkaline NaCl bearing gels at low temperature (333 K) and the influence of TEA on crystallization process", *Microporous and Mesoporous Materials*, 142, 666-671.
- Bukhari, S.S., Behin, J., Kazemian, H., Rohani, S., (2014), "Conversion of coal fly ash to zeolite utilizing microwave and ultrasound energies: A review", *Fuel*, 17, 1-17.
- Byrappa, K. dan Yoshimura, M., (2001), "*Handbok of Hydrothermal Technology*", In;McGuire, G. E., rossnagel, S. M. (Eds.), Noyes Publication, Park Ridge, Nj.
- Byrappa, K. dan Yoshimura, M., (2013), "*Handbook of Hydrothermal Technology*",USA :Niyes Publications.
- Calderon, G.D.T., Rodriguez, J.I., Ortiz-Mendez, U., Torres-Martinez, L.M., (2005), "Iron leaching of a Mexican clay of industrial interest by oxalic acid". *The Azo Journal of Material Online*, 1–8.
- Čejka, J., (2007), " Introduction to zeolite science and practice (3rd revised edition)", *Studies in Surface Science and Catalyst*, 168, 13-16.
- Chandrasekhar, S., Premadan , P.N., (1999). "Investigation on Synthesis of Zeolite NaX from Kerala Kaolin", *Journal of Porous Materials*, 6, 283–297.
- Cheng, H., Liu, Q., Yang, J., Ma, S., Frost, R. L., (2012), "The thermal behavior of kaolinite intercalation complexes-a review", *Thermochim. Acta* 545, 1-13.
- Davis, M.E., Lobo, R.F., (1992), "Zeolite and molecular sieve synthesis", *Chemistry. Materials*, 4 (4), 756-768.

- Eiden, S. and Assmann, (2002), “New heavy metal-hydro-sodalites containing Cd²⁺, Ag⁺ or Pb²⁺: synthesis by ion-exchange and characterization”, *Materials Research Bulletin*, 37, 875-889.
- Fan, W., Morozumi, K., Kimura, R., Yokoi, T., Okubo, T., (2008), “Synthesis of nanometer-sized sodalite without adding organic additives”, *Langmuir*, 24, 6952-6958.
- Felsche, J., Baerlocher, Ch., (1986), “Crystal structures of the hydro-sodalite Na₆[AlSiO₄]₆ · 8H₂O and of the anhydrous sodalite Na₆[AlSiO₄]₆ · 8H₂O “”, *Zeolites*, 6, 367-372.
- Flanigen, E.M., Robert, W.B., Stephen, T.W., (2010), “Zeolite in industrial separation and catalyst”, In: Kulprathipanja, S. (Ed.), Introduction. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co.KGaA, 1-26.
- Grim, R.E., (1968), “*Clay mineralogy*, 2nd ed”, New York, Mc Graw-Hill, 596.
- He, Q., Huang, X., Chen, Z., (2011), “Influence of organic acids, complexing agents and heavy metals on the bioleaching of iron from kaolin using Fe (III)-reducing bacteria”, *Applies Clay Science*, 51, 478-483.
- Hiyoshi, N., (2012), “Nanocrystalline sodalite: Preparation and application to epoxidation of 2-cyclohexen-1-one with hydrogen peroxide” *Applied Catalyst A: General* 419-420, 164-169.
- Holmes, S. M., Khoo, S. H., Kovo, A. S., (2011), “The direct conversion of impure natural kaolin into pure zeolite catalyst”, *Green Chemistry*, 13 (5), 1152-1154.
- Huang, Y. N., Havelange, E. A., (2001), “Why do zeolite with LTA structure undergo reversible amorphization under pressure?”, *Chemical Physics letter*, Vol.345, No.1-2, 65-71.
- Huang, Y., Yao, J., Zhang, X., Kong, C., Chen, H., Liu, D., Tsapatsis, M., Hill, M.R., Hill, A.J., wang, H., (2011), “Role of ethanol in sodalite crystallization in an ethanol-Na₂O-Al₂O₃-SiO₂-H₂O system”, *Crystal Engineering Community*, 13, 4714-4722.
- Jiang, J., Gu, X., Feng, L., Duanmu, C., Jin, Y., Hu, T., Wu, J., (2012), “Controllable synthesis of sodalite submicron crystals and microspheres from polygorskite clay using a two-step approach”, *Powder Technology*, 217, 298-303.
- Jihong, Y., (2007), “ Chapter 3: Synthesis of zeolite. In: Čejka. Jiri, V. B., H., C., Ferdi, S. (Eds.). *Studies in Surface Science and Catalyst*. Vol. 168. Elsevier, Amsterdam, 39-103.

- Julbe, A., Fairusseng, D., Jalibert, J.C., Mirodatos, C., Guizard, C., (2000), "Characteristics and performance in the oxidative dehydrogenation of propane of MFI and V-MFI zeolite membrane", *Catalyst Today*, 56 (1-3), 199-209.
- Kahraman, Sibel., Müşerref Önal, Yüksel Sarıkaya, İhsan Bozdoğan., (2005), "Characterization of Silica Polymorphs in Kaolins by X-ray Diffraction Before and After Phosphoric Acid Digestion and Thermal Treatment", *Analytica Chimica Acta*, 552, 201–206.
- Khajavi, S., Jansen, J. C., Kapteijn, F., (2010), "Production of ultra pure water by desalination of seawater using a hydroxyl sodalite membrane", *Journal of Membrane Science*, 356, 52-57.
- Kovo, A.S., (2012), "Effect of temperature on the synthesis of zeolite X from Ahoko Nigerian kaolin using novel metakaolin technique", *Chemistry Engineering Community*, 199 (6), 786-797.
- Lapides, I., dan Heller-Kallai, L., (2007), "Reactions of Metakaolin with NaOH and Colloidal Silica-Comparison of Different Samples (Part 2)", *Applied Clay Science*, 35, 94-98.
- Lee, S.O., Tran, T., Park, Y.Y., Kim, S.J. Kim, M.J., (2006), "Study on the kinetics of iron oxide leaching by oxalic acid", *International Journal of Minareal Processing*, 80, 144-152.
- Lee, S.O., Tran, T., Park, Y.Y., Kim, S.J. Kim, M.J., (2007), "Dissolution of iron oxide using oxalic acid", *Hydrometallurgy*, 87, 91-99.
- Li, H., Zhong, H., Wang, S., Xue, J., Zhang, Z., (2015), "A novel conversion process for waste residue: Synthesis of zeolite from electrolytic manganese residue and its application to the removal of heavy metals", *Colloids and surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 470, 258-267.
- Lin, De-C., Xu, Xiao-W., Zuo, F., Long, Ying-C., (2004), "Crystallization of JBW, CAN, SOD and ABW type zeolite from transfoemation of meta-kaolin", *Microporous and Mesoporous Materials*, 70, 63-70.
- Lindiane B.,Francine B., Helen T., Fabio G.P., Sibebe B.C.P., (2013), "Acid Treatments of Montmorillonite-rich Clay for Fe Removal Using a Factorial Design Method", *Materials Research*, 16(5), 1122-1127.
- Liu, Q., Dan Navrotsky, A., (2007), "Synthesis of nitrate sodalite: an in situ scanning calorimetric study", *Geo Chim. Cosmochim. Acta* 71, 2072-2078.

- Mezni, M., Hamzaoui, A., Hamdi, N., Srasa, E., (2011), "Synthesis of zeolite from the low-grade Tunisian natural illite by two different methods", *Applied Clay Science*, 52, 209-218.
- Musyoka, N. M., Missengue, R., Kuisakana, M., Petrik, L. F., (2014), "Conversion of South African clays into high quality zeolites", *Applied Clay Science*, 97-98, 182-186.
- Nabavi, M. S., Mohammadi, T., Kazemimoghadam, M., (2014), "Hydrothermal synthesis of hydroxyl sodalite zeolite membrane: separation of H₂/CH₄", *Ceramics International*, 40, 5889-5896.
- Naskar, K. M., Kundu, D., Chatterjee, M., (2011), "Coral-like hydroxyl sodalite particles from rice hush ash as silica source", *Materials Letters*, 65, 3408-3410.
- Panda, A.K., Mishra, B.G., Mishra, D.K., Singh, R.K., (2010), Effect of sulphuric acid treatment on the physico-chemical characteristics of kaolin clay. *Colloids and Surfaces A: Physicochem Engineering Aspects*, 363, 98-104.
- Prasetyoko, D., Ramli, Z., Endud, S., Hamdan, H., Sulikowski, B., (2006), "Synthesis of zeolite Beta directly from rice hush: Effect of reaction composition on crystallinity of zeolite Beta", *Indo. J. Chem*, 6(1), 11-15.
- Purnomo, C. W., Salim, C., Hinode, H., (2012), "Synthesis of pure Na-X and Na-A from bagasse fly ash", *Microporous and Mesoporous Materials*, 162, 6-13.
- Puppe, W., (1999), *Catalysis and Zeolit*, Springer, Berlin.
- Qiu, W. and Zheng, Y., (2009), "Removal of lead, copper, nickel, cobalt, and zinc from water by a cancrinite-type zeolite synthesized from fly ash", *Chemical Engineering Journal*, 145, 483-488.
- Rabenau, A., (1985), "The role of hydrothermal synthesis in preparative chemistry", *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 24. (12), 1026-1040.
- Rayalu, S. S., Udhoji, J. S., Meshram, S. U., naidu, R. R., Devotta, S., (2005), "Estimation of crystallinity in fly ash-based zeolite-A using XRD and IR spectroscopy", *Current Science*, Vol. 89, No. 12.
- Rees, L. V. C., dan Chandrasekhar, S., (1993), "Formation of zeolite from the system Na₂O-Al₂O₃-SiO₂-H₂O in alkaline medium (pH > 10)", *Zeolites*, Vol. 3, 524-533.

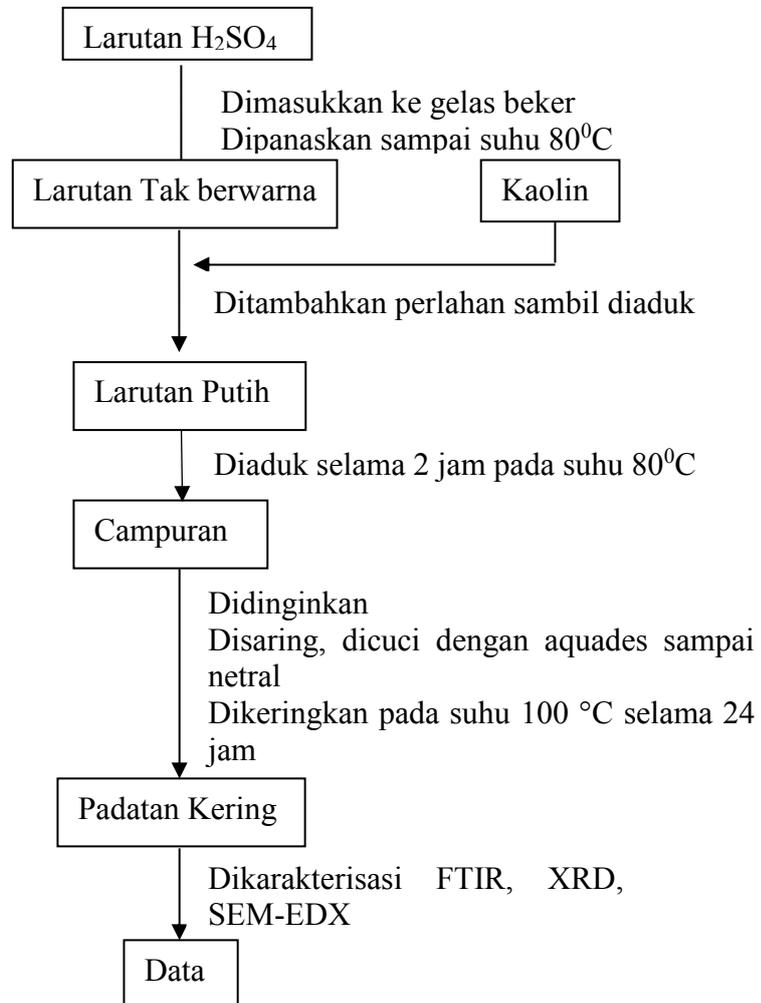
- Rios, C.A., Williams, C.D., Fullen, M.A., (2009), “Nucleation and growth history of zeolite LTA synthesized from kaolinite by two different methods”, *Applied Clay Science*, 42, 446-454.
- Sachse, A., Galarneau, A., Fajula, F., Coq, B., (2010), “Synthesis of zeolite monoliths for flow continuous processes. The case of sodalite as a basic catalyst”, *Chemistry of Materials*, 22, 4123-4125.
- Saikia, N.J., Bharali, D.J., Sengupta, P., Bordoloi, D., Goswamee, R.L., Saikia, P.C., Borthakur, P.C., (2003). “Characterization, beneficiation and utilization of a kaolinite clay from Assam”, India. *Applied Clay Science* 24, 93–103.
- Shanbhag, G. V., Choi, M., Kim, J., Ryoo, R., (2009), “Mesoporous sodalite: A novel, stable solid catalyst for base-catalyzed organic transformations”, *Journal of Catalysis*, 264, 88-92.
- Sibilia P., (1996), Guide to Material characterization and chemical analysis, second edition. *John Willey-VCH*, New York.
- Smart, L., dan Moore, E., (1993), *Solid State Chemistry*, First edition, Chapman and Hall University and Professional Division, London.
- Sun, G., Liu, Y., Yang, J., Wang, J., (2011), ‘Seeded synthesis of small polycrystalline NaY zeolite membrane using zeolite structure-directing agent and its pervaporation performance”, *Journal Porous Materials*, 18 (4), 466-473.
- Taran, M., Aghae, E., (2015). Designing and optimization of separation process of iron impurities from kaolin by oxalic acid in bench-scale stirred-tank reactor. *Applied Clay Science*, 107, 109-116.
- Tuncuk, A., Ciftlik, S., Akcil, A. (2013). “Factorial experiments for iron removal from kaolin by using single and two-step leaching with sulfuric acid”. *Hydrometallurgy*, 134-135, 80-86.
- Vegliò, F., Pagliarini, A., Toro, L., (1993). “Factorial experiments for the development of a kaolin bleaching process”. *International Journal of Mineral Processing*. 39, 87–99.
- Vegliò, F., Passariello, B., Toro, L., Marabini, A.M., (1996). “Development of a bleaching process for a kaolin of industrial interest by oxalic, ascorbic, and sulfuric acids: preliminary study using statistical methods of experimental design”. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 35, 1680–1687.
- Vegliò, F., Passariello, B., Barbaro, M., Plescia, P., Marabini, A.M., (1998). “Drum leaching tests in iron removal from quartz using oxalic and

- sulphuric acids". *International Journal of Mineral Processing*. 54, 183–200.
- Wajima, T., Munakata, K., (2011), "Material conversion from paper sludge ash in NaOH solution to synthesize adsorbent for removal of Pb^{2+} , NH_4^+ and PO_4^{3-} from aqueous solution", *Journal of Environmental Science*, 23(5), 718-724.
- Wahyuni, Tri., (2015), "Sintesis sodalit dari kaolin secara langsung", *Thesis Kimia ITS*, Surabaya.
- Wang, T., Lu, X., Yan, Y., (2010), "Synthesis, characterization and crystallization mechanism of SAPOs from natural kaolinite", *Microporous and Mesoporous Materials*, 136, 138-147.
- Wang, N., Liu, Y., Huang, A., Caro., (2014), "Supported SOD membrane with steam selectivity by a two-step repeated hydrothermal synthesis", *Microporous and Mesoporous Materials*, 192, 8-13.
- West A.R., (1984), *Solid state chemistry and its applications*. John Wiley & Sons, New York.
- Wladinger, R.L., Kerr, G.T., dan Rosinski, E.J., (1967), *United State patent:3*, page. 308.
- Xu, R., Pang, W., Yu, J., Huo, Q., Chen, J., (2007), *Chemistry of zeolite and related porous materials*, John Wiley & Sons.
- Yao, J., Zhang, L., Wang, H., (2008), "Synthesis of nanocrystalline sodalite with organic additives", *Materials Letters*, 62, 4028-4030.
- Yu, H., Shen, J., Li, J., Sun, X., Han, W., (2014), "Preparation, characterization and adsorption properties of sodalite pellets", *Materials Letters*, 132, 259-262.
- Zaman, B., (2015), Sintesis Sodalit Dari Kaolin Bangka Belitung : Pengaruh Variasi Rasio SiO_2/Al_2O_3 . *Skripsi Kimia IITS*, Surabaya.
- Zang, Y., Gao, W., Cui, L., (2007), "Studies in surface science and catalysis", *Elsevier*, 170, 420-425.

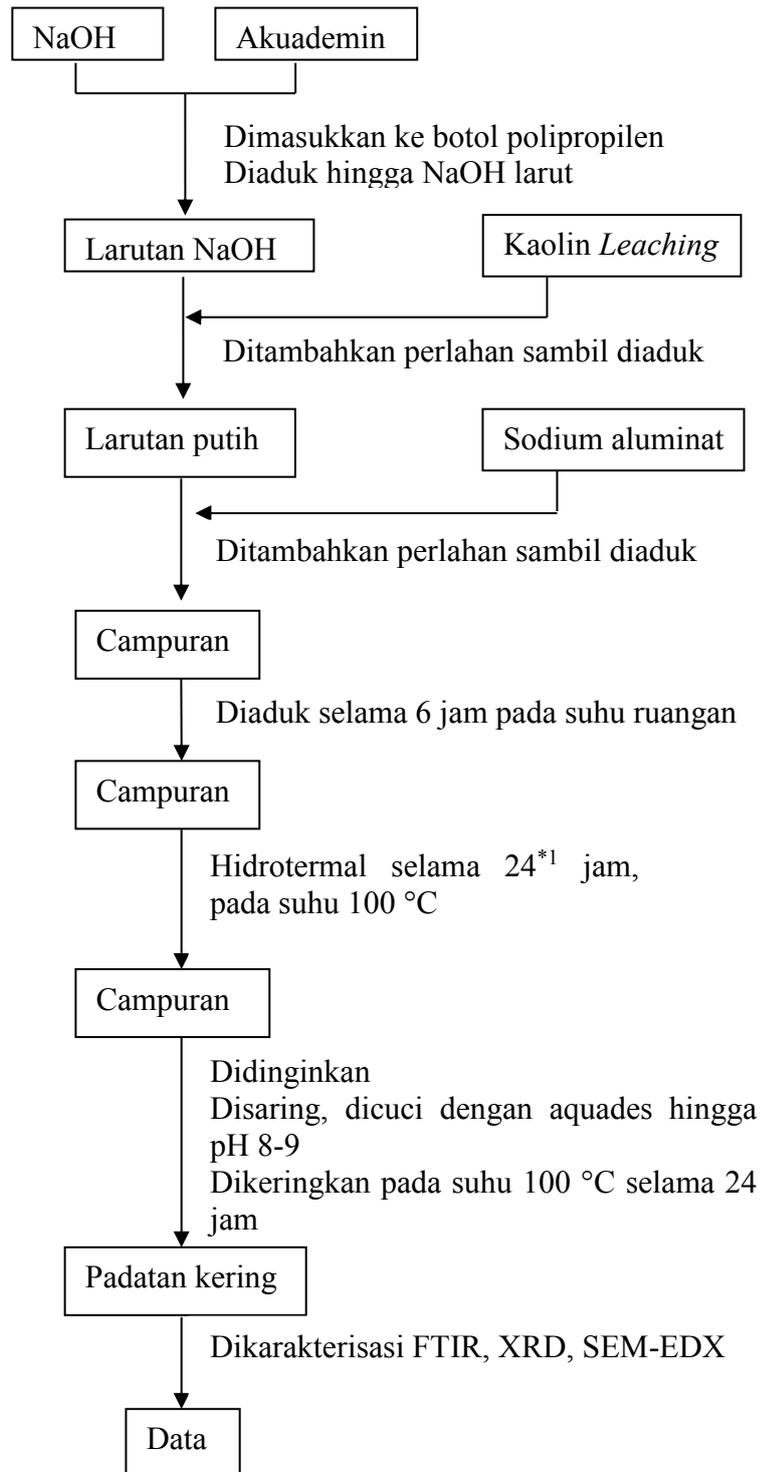
LAMPIRAN A

DIAGRAM ALIR PENELITIAN

1. Proses Leaching Kaolin



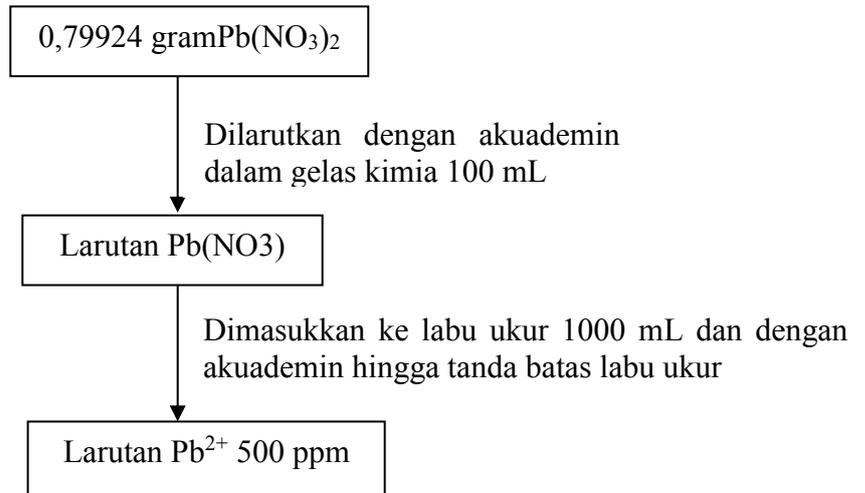
2. Sintesis Sodalit



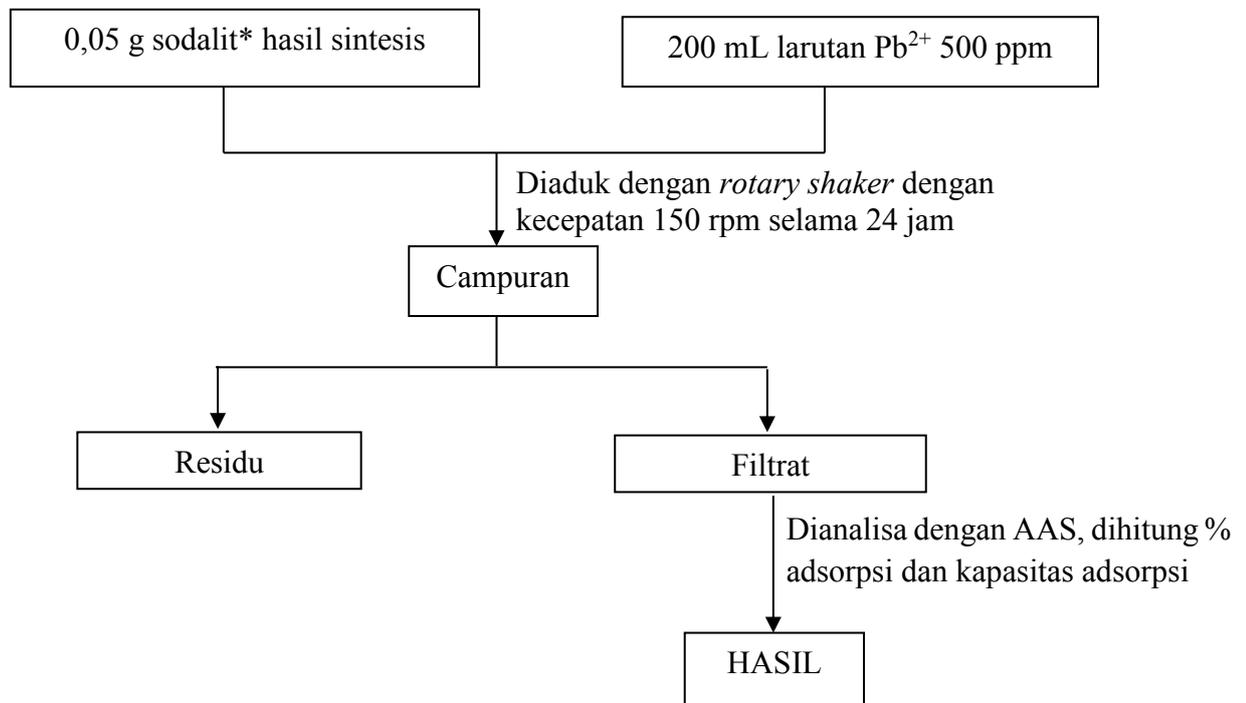
*¹ varisasi waktu hidrotermal :1, 2, 3, 6, 9, 12, 24, 36, 48 jam

3. Adsorpsi ion Logam Pb

3.1. Persiapan Larutan Logam Pb²⁺ 500 ppm



3.2 Uji Adsorpsi Ion Logam Pb²⁺



*: Sodalit pada waktu hidrotermal 6, 24, 36, 48 jam dan sodalit standar.

*: Kaolin sebelum dan sesudah *leaching*

LAMPIRAN B PERHITUNGAN

Perhitungan Komposisi Molar Sintesis Sodalit

- Bahan-bahan yang digunakan untuk sintesis sodalit antara lain:

1. Kaolin ($\text{Al}_4(\text{Si}_4\text{O}_{10})(\text{OH})$) sebanyak 3 gram

Terdiri dari : SiO_2 : 0.194 mol

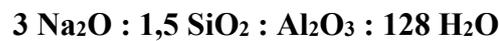
Al_2O_3 : 0.072 mol

2. Aquades (H_2O), Mr = 18 gram/mol

3. NaOH pellet, Mr = 40 gram/mol

4. Sodium aluminat (NaAlO_2)

- Perbandingan komposisi molar sodalit:



- Perhitungan yang dibutuhkan pada masing-masing bahan:

➤ **Kaolin :**

○ Mol SiO_2 = 0.194 mol

○ Mol Al_2O_3 = 0.072 mol

Rasio mol pada kaolin : $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 0.194 : 0.072$

$$\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 2.695 : 1$$

Rasio mol yang ditentukan : $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 = 1.5 : 1$

$$\text{Mol Al}_2\text{O}_3 \text{ sebenarnya} = \frac{0.194}{1.5} = 0.1293 \text{ mol}$$

Mol Al_2O_3 yang diperlukan = mol Al_2O_3 sebenarnya – mol Al_2O_3 kaolin

$$= 0.1293 - 0.072$$

$$= 0.0573 \text{ mol}$$

Massa Al_2O_3 = mol Al_2O_3 x Mr. Al_2O_3

$$= 0.0573 \text{ mol} \times 101.96 \text{ gram/mol}$$

$$= 5.8457 \text{ gram}$$

➤ **Sodium aluminat:**

% Na_2O = 40 – 45%

% Al_2O_3 = 50 – 56%

○ Massa Al_2O_3 dalam sodium aluminat:

$$\text{Massa Al}_2\text{O}_3 = 56\% \times Y$$

$$5.8457 \text{ gram} = 56\% \times Y$$

$$Y = \frac{5.8457 \text{ gram}}{56\%} = 10.438 \text{ gram}$$

Massa sodium aluminat yang diperlukan = 10.438 gram

- Massa Na₂O dalam sodium aluminat:

$$\text{Massa Na}_2\text{O} = \text{massa sodium aluminat yang diperlukan} \times 44\%$$

$$= 10.438 \text{ gram} \times 44\%$$

$$= 4.593 \text{ gram}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O} = \text{massa Na}_2\text{O} / \text{Mr. Na}_2\text{O}$$

$$= \frac{4.593 \text{ gram}}{62 \text{ gram/mol}}$$

$$= 0.074 \text{ mol}$$

➤ **Sodium hidroksida (NaOH):**

$$\text{Mol Na}_2\text{O dari rasio} = \frac{\text{rasio mol Na}}{\text{rasio mol Si}} \times \text{mol Si dari kaolin}$$

$$= \frac{1,5}{1,5} \times 0.194 \text{ mol} = 0.194 \text{ mol}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O yang diperlukan} = \text{mol Na}_2\text{O dari rasio} - \text{mol Na}_2\text{O dari sodium aluminat}$$

$$= 0.194 \text{ mol} - 0.074 \text{ mol} = 0.12 \text{ mol}$$

$$\text{Massa NaOH} = 2 \times 0.12 \text{ mol} \times 40 \text{ gram/mol}$$

$$= 9.6 \text{ gram}$$

➤ **Massa Air (H₂O):**

$$\text{Mol H}_2\text{O} = \frac{\text{rasio mol air}}{\text{rasio mol Si}} \times \text{mol Si dari kaolin}$$

$$= \frac{128}{1.5} \times 0.194 \text{ mol} = 8.278 \text{ mol}$$

$$\text{Massa H}_2\text{O} = \text{mol} \times \text{Mr. H}_2\text{O}$$

$$= 8.278 \text{ mol} \times 18 = 149.01 \text{ gram}$$

LAMPIRAN C
PEMBUATAN KURVA KALIBRASI ION Pb²⁺

1. Perhitungan Preparasi Larutan Pb

1.1 Perhitungan Pembuatan Larutan Pb²⁺ 500 ppm dari padatan Pb(NO₃)₂

$$\begin{aligned}\text{Konsentrasi Logam Pb}^{2+} &= \frac{\text{Mr Pb(NO}_3)_2}{\text{Ar Pb}} \times 500 \text{ mg/L} \\ &= \frac{331,19 \text{ g/mol}}{207,19 \text{ g/mol}} \times 500 \text{ mg/L} \\ &= 799,24 \text{ mg/L} \\ &= 0,79924 \text{ g/L}\end{aligned}$$

Jadi untuk membuat larutan Pb 500 ppm dalam labu ukur 1 L dibutuhkan 0,79924 g padatan Pb(NO₃)₂. Larutan tersebut juga dijadikan sebagai larutan Pb²⁺ standar 500 ppm untuk pembuatan kurva kalibrasi.

1.2 Pembuatan Larutan Standar Pb²⁺ 50 ppm, 100, 200, dan 300 ppm.

Larutan Pb²⁺ 50 ppm dibuat dari larutan stok 500 ppm (g/L) yang diencerkan dalam labu ukur 50 mL. Perhitungannya adalah sebagai berikut:

$$\begin{aligned}C_1 \times V_1 &= C_2 \times V_2 \\ 500 \text{ g/L} \times V_1 &= 50 \text{ g/L} \times 50 \text{ mL} \\ V_1 &= \frac{50 \text{ g/L} \times 50 \text{ mL}}{500 \text{ g/L}} \\ V_1 &= 5 \text{ mL}\end{aligned}$$

Pembuatan larutan standar 100 mg/L, 200 mg/L, 300 mg/L menggunakan cara perhitungan seperti pembuatan larutan standar Pb²⁺ 50 mg/L sehingga didapatkan data pada Tabel C.1.

Keterangan: C₁ = konsentrasi larutan Pb²⁺ awal (mg/L)

C₂ = konsentrasi larutan Pb²⁺ akhir (mg/L)

V₁ = volume awal larutan Pb²⁺ mL

V₂ = volume akhir larutan Pb²⁺ mL

Tabel C.1 Konsentrasi larutan standar Pb^{2+}

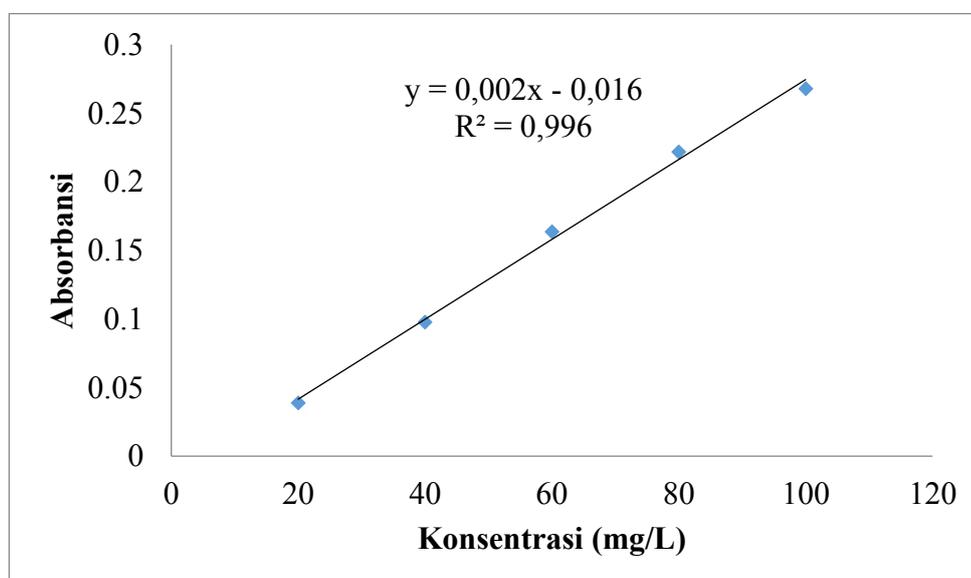
C_1	V_1	C_2	V_2
500	5	50	50
500	10	100	50
500	20	200	50
500	60	300	100

1.2.3 Pembuatan kurva kalibrasi ion Pb^{2+}

Tabel C.2 Data serapan ion Pb^{2+}

Konsentrasi ion Pb^{2+} (mg/L)	Absorbansi
20	0,0388
40	0,0978
60	0,1636
80	0,2220
100	0,2679

Berdasarkan Tabel C.2, dibuat kurva kalibrasi antara konsentrasi sebagai sumbu X dan absorbansi sebagai sumbu Y yang ditunjukkan pada Gambar C.1.



Gambar C.1. Kurva kalibrasi absorbansi terhadap konsentrasi ion Pb (mg/L)

Tabel C.3 Data untuk menghitung garis regresi linear

x	y	$(x - \bar{x})$	$(y - \bar{y})$	$(x - \bar{x})^2$	$(y - \bar{y})^2$	$(x - \bar{x})(y - \bar{y})$
20	0,0388	-40	-0,11922	1600	0,0142134	4,7688
40	0,0978	-20	-0,06022	400	0,0036264	1,2044
60	0,1636	0	0,00558	0	0,0000311	0
80	0,2220	20	0,06398	400	0,0040934	1,2796
100	0,2679	40	0,10988	1600	0,0120736	4,3952
300	0,7901			4000		11,648
60	0,1580					

$$\bar{x} = \frac{\sum x}{5} = \frac{300}{5} = 60$$

$$\bar{y} = \frac{\sum y}{5} = \frac{0,7901}{5} = 0,1580$$

$$b = \frac{\sum\{(x-\bar{x})(y-\bar{y})\}}{\sum(x-\bar{x})^2}$$

$$b = \frac{11,648}{4000} = 0,002912$$

$$a = \bar{y} - b\bar{x}$$

$$a = 0,1580 - (0,002912 \times 60)$$

$$a = -0,0167$$

Jadi persamaan regresi linier yang diperoleh adalah:

$$y = bx - a$$

$$y = 0,002x - 0,0167$$

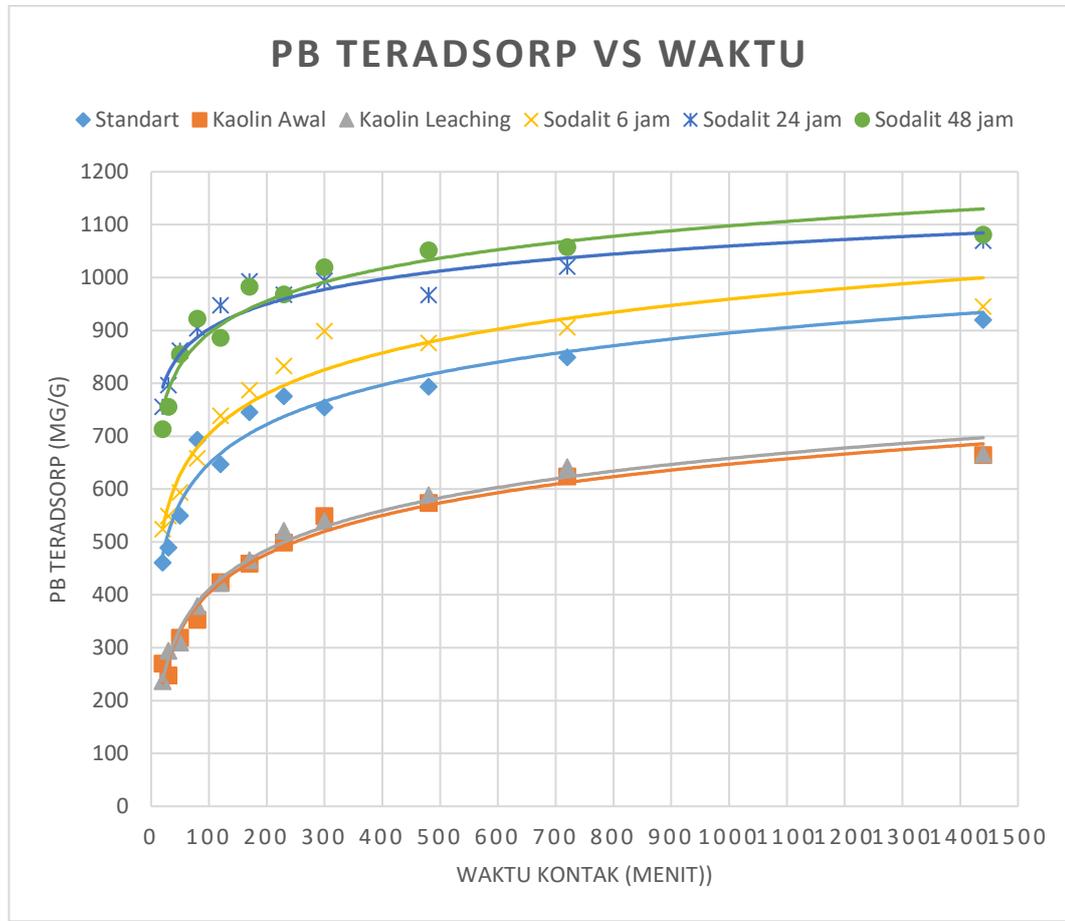
Persamaan garis lurus antara konsentrasi larutan ion Pb sebagai sumbu x dengan absorbansi sebagai sumbu y ditunjukkan pada Gambar C.1. Berdasarkan perhitungan secara langsung dengan Microsoft excel didapatkan nilai $R^2 = 0,996$ sehingga nilai R dianggap layak.

LAMPIRAN D
PERHITUNGAN KAPASITAS ADSORPSI

1.1 Perhitungan Kapasitas Adsorpsi

- Konsentrasi Pb yang digunakan = 500 ppm
- Volume larutan Pb induk = 1000 mL = 1 L
- Volume larutan Pb yang digunakan untuk adsorpsi = 200 mL = 0,2 L
- Volume larutan Pb diambil untuk analisis AAS (sampling) = 5 mL = 0,005L
- Faktor kelipatan: 0,2 L/0,005 L = 40
- Massa Pb berdasarkan perhitungan AAS:
 - Massa Pb awal (C_0) = konsentrasi Pb^{2+} x volume sampling x faktor koreksi
$$= 500 \text{ ppm} \times 0,005 \text{ L} \times 40$$
$$= 100 \text{ mg}$$
 - Massa Pb akhir (C_e) = konsentrasi Pb^{2+} x volume sampling x faktor koreksi
$$= 384,913 \text{ ppm} \times 0,005 \text{ L} \times 40$$
$$= 76,9826 \text{ mg}$$
- Massa Pb = massa Pb awal – massa Pb akhir
$$= 100 \text{ mg} - 76,9826 \text{ mg} = 23,0174 \text{ mg}$$
- Jumlah Pb teradsorp pada sampel sodalit (q_e) = $\frac{\text{massa Pb (mg)}}{\text{massa sodalit (gram)}}$
$$= \frac{23,0174 \text{ mg}}{0,05 \text{ gram}}$$
$$= 460,35 \frac{\text{mg}}{\text{gram}}$$
- % adsorpsi = $\frac{\text{massa Pb (mg)}}{\text{massa Pb awal}} \times 100\%$
$$= \frac{23,0174 \text{ mg}}{100 \text{ mg}} \times 100\%$$
$$= 23,02 \%$$

Perhitungan di atas contoh perhitungan untuk sampel S-Standard pada waktu kontak 20 menit. Hal itu berlaku untuk S-standar, kaolin awal, kaolin *leaching*, H-6, H-24, dan H-48 sehingga hasil perhitungan dapat dilihat pada Tabel D.1 dan D.2.



Gambar D.1 Jumlah Pb yang teradsorp pada sampel S-standar, Kaolin awal Kaolin *Leaching*, H-6, H-24, dan H-48.

Grafik antara waktu dan q_e dibuat dengan cara memplot antara waktu sebagai sumbu x dan q_e sebagai sumbu y, diperoleh grafik yang ditunjukkan pada Gambar D.1. Berdasarkan Tabel D.1 dan D.2 serta Grafik D.1 diperoleh waktu optimum untuk adsorpsi Pb adalah 720 menit (24 jam).

Tabel D.1 Hasil perhitungan adsorpsi S-standar, kaolin awal (KA), kaolin *leaching* (KL), H-6, H-24, dan H-48

t (menit)	Ce (ppm)						Pb teradsorp (mg)					
	S-std	KA	KL	H-6	H-24	H-48	S-std	KA	KL	H-6	H-24	H-48
0	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
20	76.98	86.51	88.18	73.79	62.23	64.35	23.02	13.49	11.82	26.21	37.77	35.65
30	75.54	87.64	85.31	72.57	60.18	62.24	24.46	12.36	14.69	27.43	39.82	37.76
50	72.53	84.07	84.53	70.33	56.90	57.25	27.47	15.93	15.47	29.67	43.10	42.75
80	65.34	82.36	81.08	67.09	54.79	53.88	34.66	17.64	18.92	32.91	45.21	46.12
120	67.66	78.82	78.90	63.09	52.64	55.71	32.34	21.18	21.10	36.91	47.36	44.29
170	62.74	77.07	76.72	60.66	50.36	50.88	37.26	22.93	23.28	39.34	49.64	49.12
230	61.24	75.06	73.95	58.35	51.63	51.60	38.76	24.94	26.05	41.65	48.37	48.40
300	62.31	72.54	73.05	55.07	50.30	49.03	37.69	27.46	26.95	44.93	49.70	50.97
480	60.33	71.31	70.59	56.20	51.66	47.43	39.67	28.69	29.41	43.80	48.34	52.57
720	57.55	68.81	67.93	54.72	48.96	47.14	42.45	31.19	32.07	45.28	51.04	52.86
1440	54.02	66.81	66.69	52.74	46.53	45.96	45.98	33.19	33.31	47.26	53.47	54.04

Tabel D.2 Hasil perhitungan adsorpsi S-standar, kaolin awal (KA), kaolin *leaching* (KL), H-6, H-24, dan H-48

t (menit)	Jumlah Pb teradsorp (qe) (mg/g)						% teradsorp (%)					
	S-std	KA	KL	H-6	H-24	H-48	S-std	KA	KL	H-6	H-24	H-48
0	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
20	460.35	269.84	236.45	524.18	755.44	712.97	23.02	13.49	11.82	26.21	37.77	35.65
30	489.26	247.27	293.70	548.63	796.37	755.20	24.46	12.36	14.69	27.43	39.82	37.76
50	549.46	318.56	309.46	593.30	861.99	854.99	27.47	15.93	15.47	29.67	43.10	42.75
80	693.23	352.82	378.48	658.26	904.20	922.36	34.66	17.64	18.92	32.91	45.21	46.12
120	646.79	423.63	422.08	738.27	947.29	885.86	32.34	21.18	21.10	36.91	47.36	44.29
170	745.18	458.61	465.70	786.85	992.86	982.33	37.26	22.93	23.28	39.34	49.64	49.12
230	775.18	498.89	521.01	832.99	967.38	968.00	38.76	24.94	26.05	41.65	48.37	48.40
300	753.89	549.12	538.99	898.50	993.90	1019.42	37.69	27.46	26.95	44.93	49.70	50.97
480	793.42	573.84	588.18	875.91	966.84	1051.49	39.67	28.69	29.41	43.80	48.34	52.57
720	849.01	623.73	641.43	905.52	1020.82	1057.16	42.45	31.19	32.07	45.28	51.04	52.86
1440	919.65	663.89	666.10	945.24	1069.35	1080.76	45.98	33.19	33.31	47.26	53.47	54.04

LAMPIRAN E
PERHITUNGAN KRISTALINITAS

Kristalinitas sampel ditentukan pada puncak difraksi (2θ): $14,06^\circ$ (1 1 0), $24,48^\circ$ (2 1 1), $31,77^\circ$ (3 1 0), $34,89^\circ$ (2 2 2), $43,08^\circ$ (4 1 1). Kristalinitas dihitung dengan rumus sebagai berikut:

$$\% \text{ kristalinitas} = \frac{\text{jumlah total intensitas relatif sampel}}{\text{jumlah total intensitas relatif standar}} \times 100 \%$$

- Untuk sampel H-12 :

$$\begin{aligned} \% \text{ kristalinitas} &= \frac{786 + 710 + 176 + 223 + 214}{1321 + 1969 + 751 + 740 + 445} \times 100 \% \\ &= \frac{2109}{5226} \times 100 \% \\ &= 40 \% \end{aligned}$$

Berdasarkan perhitungan tersebut untuk masing-masing sampel maka didapatkan data kristalinitas pada tabel E.1.

Tabel E.1. Kristalinitas masing-masing sampel sodalit

Sampel	Tinggi Puncak (2θ)					Jumlah	Kristalinitas (%)
	14,06	24,48	31,77	34,89	43,08		
Standar	1323,14	1968,75	751,2	740,23	445,49	5228,81	100
H-1	-	-	-	-	-	-	-
H-2	-	-	-	-	-	-	-
H-3	111,24	-	-	-	51,83	163,07	3,11
H-6	349,43	-	120,42	-	142,59	612,44	11,71
H-9	389,99	588,26	223,9	254,33	226,09	1682,57	32,17
H-12	786,61	710,06	176,6	223,71	214,58	2111,56	40,38
H-24	910,84	988,66	201,87	319,96	278,69	2700,02	51,63
H-36	897,94	954,33	210,18	314,03	280,22	2656,7	50,80
H-48	768,54	861,46	200,56	298,69	261,76	2391,01	45,72

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BIODATA PENULIS



Penulis bernama lengkap Luklu'im Mantsuro, lahir di Jombang, tanggal 4 Februari 1989 dan merupakan putri kedua dari enam bersaudara. Penulis telah menempuh pendidikan formal di SD Negeri 1 Japanan Mojowarno (1995-2001), SMP Negeri 1 Mojoagung Jombang (2001-2004), SMA Muhammadiyah 1 Jombang (2004-2007), dan S1 Kimia ITS (2007-2012). Penulis selanjutnya melanjutkan jenjang pendidikan S2 dan diterima di Jurusan Kimia FMIPA-ITS melalui jalur Beasiswa BPPDN DIKTI pada tahun 2012 dengan NRP 1412 201 020 / 01211250010020. Selama menempuh pendidikan di jurusan Kimia-ITS, penulis pernah aktif dan berpartisipasi dalam organisasi BEM S2 HMP (Himpunan Mahasiswa Pascasarjana) ITS sebagai ketua umum dan HIMMPAS (Himpunan Mahasiswa Muslim Pascasarjana) ITS. Dan sekarang penulis menjabat sebagai bendahara dan manager Program Yayasan Pengembangan SDM IPTEK. Untuk menyelesaikan jenjang pendidikan S-2 nya, penulis mengambil Tugas Akhir di bidang Kimia Anorganik dengan judul Tesis “Sintesis Sodalit dari Kaolin dengan *Treatment* Asam Sulfat”, dibawah bimbingan Dra. Ratna Ediaty, M.S., Ph.D. dan Prof. Didik Prasetyoko, M.Sc.

Email : lukluim@gmail.com
No telp. : 0857 313 88 949/0822 332 92 898

“Halaman ini sengaja dikosongkan”