

# SINTESIS GRANUL KOMPOSIT ZEOLIT-GEOPOLIMER DAN ADSORPSINYA PADA METILEN BIRU

## *Synthesis of Zeolite-Geopolymer Composite Granules and Their Adsorption on Methylene Blue*

Haditsah Salsabila<sup>1)</sup>, Zaenal Abidin<sup>1)</sup>\*, Irma Isnafia Arief<sup>2)</sup> dan Trivadila<sup>1)</sup>

1) Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam IPB, Jl. Meranti Kampus IPB Darmaga Bogor 16680

2) Departemen Ilmu Produksi dan Teknologi Peternakan, Fakultas Peternakan IPB, Jl. Meranti Kampus IPB Darmaga Bogor 16680

### ABSTRACT

Indonesia is one of the largest textile industrial producers in Southeast Asia. The high production of textile goods and the inadequate processing of textile wastewater have made Indonesia is the country which has the largest textile industry wastewater in Southeast Asia. Textile liquid waste, which is mostly dye waste, needs to be managed so that it does not have a negative impact when the liquid waste is released into the waters. One of the dye waste management techniques is by using adsorbent materials such as zeolite. In this study, zeolite was composited with geopolymer and formed into granules in order to have high adsorption capacity and resistance. The composite was synthesized by mixing zeolite, metakaolin and sodium silicate ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ), then dried in an oven at 100 °C for 2 hours. The samples used were then tested for adsorption on methylene blue. Sample precursors were also characterized using XRD and SEM. The results of the adsorption test showed that the zeolite-geopolymer granule composite has an adsorption capacity of 52.68 mg/g for small granules and 20.85 mg/g for large granules so that it can be applied in aquatic environments and could be applied to aquatic environments.

*Keywords:* geopolymer, granule, methylene blue, zeolite

### ABSTRAK

Indonesia merupakan salah satu produsen industri tekstil terbesar di Asia Tenggara. Produksi barang tekstil yang tinggi dan kurang memadainya proses pengelolaan limbah cair tekstil membuat Indonesia menjadi negara dengan limbah cair industri tekstil terbesar di Asia Tenggara. Salah satu teknik pengelolaan limbah pewarna yakni dengan menggunakan bahan adsorben seperti zeolit. Pada penelitian ini, zeolit dikompositkan dengan geopolimer dan dibentuk menjadi granul agar memiliki kemampuan adsorpsi dan ketahanan yang tinggi. Komposit disintesis dengan mencampurkan zeolit, metakaolin, dan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ), kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 100 °C selama 2 jam. Sampel-sampel yang digunakan kemudian diuji adsorpsi pada metilen biru. Prekursor sampel dikarakterisasi menggunakan XRD serta SEM. Hasil pengujian adsorpsi menunjukkan bahwa komposit granul zeolit-geopolimer memiliki kemampuan adsorpsi sebesar 52.68 mg/g untuk granul kecil dan 20.85 mg/g untuk granul besar sehingga dapat diaplikasikan pada lingkungan perairan.

Kata kunci: geopolimer, granul, metilen biru, zeolit

### PENDAHULUAN

Indonesia merupakan negara terbesar ketiga dalam perkembangan industri tekstil di Asia Tenggara. Pengolahan limbah industri tekstil yang kurang memadai menjadikan Indonesia sebagai negara terbesar penghasil limbah cair industri tekstil di Asia Tenggara (World Bank Group, 2016). Pada tahun 2013, Indonesia menghasilkan limbah industri tekstil sebesar 256,07 ton/hari yang mengandung BOD (*Biochemical Oxygen Demand*), COD (*Chemical Oxygen Demand*), pH, temperatur, turbiditas, salinitas, dan bahan kimia toksik yang tinggi (Lolo dan Pambudi, 2020). Limbah tekstil sebagian besar merupakan limbah pewarna sintesis. Mayoritas industri tekstil menggunakan pewarna sintesis karena dinilai lebih murah, tahan lama, mudah diperoleh, dan mudah dalam penggunaannya. Namun, penggunaan pewarna sintesis menghasilkan limbah berwarna yang sulit untuk didegradasi (Agustina dan Amir, 2012).

Pewarna dibedakan menurut struktur kimianya yang terdiri atas gugus kromofor. Sebagian besar pewarna

memiliki struktur kimia yang rumit sehingga tahan ketika diuraikan secara aerobik. Metilen biru merupakan pewarna sintesis yang paling umum digunakan, seperti untuk pewarnaan kapas, kayu, dan kulit. Metilen biru dapat menyebabkan detak jantung meningkat, mual dan muntah, serta mengakibatkan iritasi mata/kulit termasuk sianosis apabila mengalami kontak secara tidak sengaja (Meili *et al.*, 2018). Oleh karena itu, perlu adanya suatu teknik pengolahan untuk menangani limbah pewarna tersebut.

Limbah pewarna dalam lingkungan perairan dapat diatasi dengan penggunaan adsorben seperti zeolit, kaolin, bentonit, dan arang aktif. Rida *et al.* (2013) telah melakukan adsorpsi metilen biru menggunakan kaolin dan zeolit. Metilen biru juga telah terbukti dapat diadsorpsi oleh bentonit (Liu *et al.*, 2014) dan arang aktif (Kuang *et al.*, 2020). Penggunaan adsorben dalam bentuk serbuk memiliki kemampuan adsorpsi yang tinggi, namun dapat menyumbat filter maupun ikut larut dengan air limbah. Oleh karena itu, penggunaan adsorben dalam bentuk granul akan lebih aplikatif ketika digunakan dalam filter pengolahan air limbah.

\*) Penulis Korespondensi: Telp. +62895349835332; Email. [haditsah.salsabila07@gmail.com](mailto:haditsah.salsabila07@gmail.com) DOI: <http://dx.doi.org/10.29244/jitl.26.1.12-20>

Penelitian sebelumnya telah dilakukan oleh Fitriani dan Purbasari (2021) yaitu menggunakan geopolimer sebagai adsorben pada limbah pewarna. Pada penelitian tersebut geopolimer dibentuk dari pencampuran material aluminosilikat dengan alkali hidroksida. Tome *et al.* (2021) juga melakukan penelitian mengenai kemampuan adsorpsi geopolimer untuk menghilangkan pewarna kation dan anion dalam perairan. Geopolimer yang disintesis oleh Tome *et al.* (2021) menggunakan abu vulkanik sebagai sumber material aluminosilikat dan larutan aktivator asam dan alkali. Adapun Sanguanpak *et al.* (2021) menggunakan geopolimer berbahan dasar metakaolin untuk menghilangkan ammonium dalam lingkungan perairan.

Pada penelitian ini, zeolit dikompositkan dengan geopolimer agar memiliki struktur lebih rigid. Komposit zeolit-geopolimer kemudian dibentuk menjadi granul agar penggunaannya dalam lingkungan perairan menjadi lebih aplikatif. Material zeolit tidak memiliki ketahanan yang tinggi dalam perairan. Ketika zeolit yang tidak dikompositkan dengan geopolimer diletakkan dalam lingkungan perairan maka akan membuat zeolit larut sehingga membuat zeolit sulit dipisahkan dengan air.

Zeolit merupakan mineral yang tersusun dari kristal aluminosilikat terhidrasi yang mengandung alkali tanah dan kation alkali dalam kerangka tiga dimensinya (Parapaga, 2018). Kerangka dasar zeolit tersusun dari susunan tetrahedral kation silikon ( $\text{Si}^{4+}$ ) dan kation aluminium ( $\text{Al}^{3+}$ ) yang dikelilingi empat atom oksigen ( $\text{O}_2$ ) (Moshoeshoe *et al.*, 2017). Terdapat dua jenis zeolit yaitu zeolit alam dan zeolit sintesis. Pada penelitian ini digunakan zeolit alam sebagai bahan baku pembuatan komposit. Geopolimer merupakan polimer anorganik terdiri atas jaringan Si-Al tetrahedron yang berisi  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$  yang saling berbagi atom oksigen (Villa *et al.*, 2010). Penelitian ini bertujuan menyintesis granul komposit zeolit-geopolimer dan menguji kemampuan adsorpsinya pada metilen biru.

## BAHAN DAN METODE

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini di antaranya zeolit, akuades, metakaolin,  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ , dan metilen biru. Alat yang digunakan dalam penelitian ini di antaranya wadah sampel, alat gelas, mikropipet, oven, instrumen spektrofotometri UV-Vis, XRD, dan SEM, neraca analitik, sudip, serta perangkat lunak Origin dan Minitab.

Awalnya metakaolin dicampurkan dengan zeolit dengan perbandingan massa 9:1 dan dilakukan pengadukan hingga homogen. Campuran zeolit dan metakaolin kemudian ditambahkan ke dalam natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) secara sedikit demi sedikit sambil diaduk. Campuran

komposit kemudian dibentuk menjadi granul kecil dan granul besar. Campuran komposit granul dikeringkan dalam oven pada suhu  $100\text{ }^\circ\text{C}$  selama 2 jam.

Metilen biru dengan konsentrasi 25, 50, 100, 150, 200, 300, 500, dan 600 ppm diadsorpsikan pada sampel komposit granul, geopolimer, dan zeolit yang dihasilkan. Proses adsorpsi dilakukan dengan pengocokan selama 24 jam pada suhu ruang. Hasil pengujian adsorpsi kemudian diukur absorbansinya menggunakan spektrofotometri UV-Vis sebanyak 3 kali ulangan dan hasil pengukurannya dianalisis menggunakan perangkat lunak Origin. Sampel-sampel juga dikarakterisasi dengan XRD dan instrumen SEM. Hasil karakterisasi tersebut kemudian dianalisis menggunakan perangkat lunak Minitab.

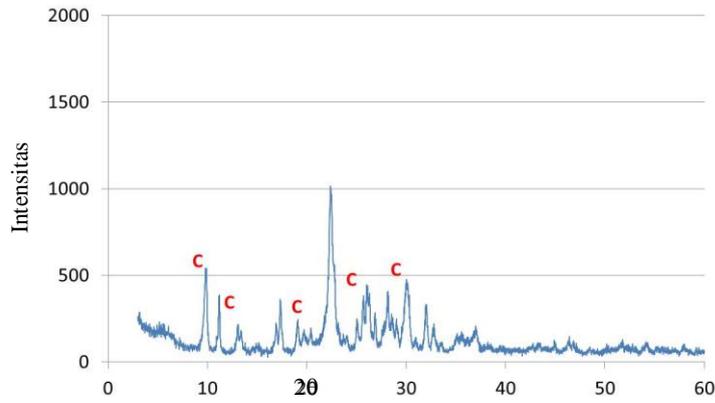
## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Analisa Zeolit Alam

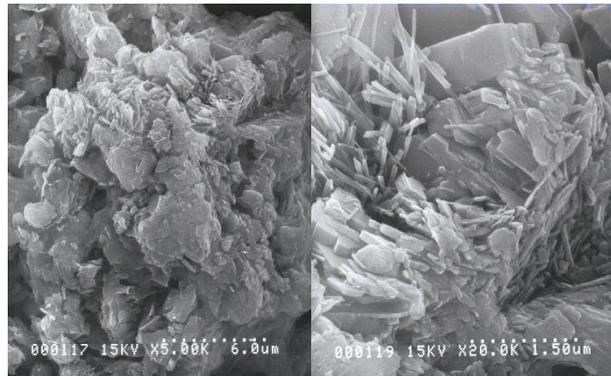
Sampel-sampel yang digunakan yaitu zeolit alam, geopolimer, komposit zeolit-geopolimer, dan zeolit-geopolimer (*physical mixing*). Sampel zeolit alam yang digunakan berasal dari kecamatan Nanggung, Kabupaten Bogor, Jawa Barat, Indonesia. Sampel zeolit alam yang digunakan dikarakterisasi menggunakan instrumen XRD dan SEM. Karakterisasi XRD digunakan untuk menentukan jenis zeolit yang terkandung dalam sampel zeolit alam tersebut. Adapun SEM digunakan untuk menunjukkan tampilan permukaan dari sampel zeolit alam.

Pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa sampel zeolit alam Nanggung sebagian besar mengandung zeolit tipe klinoptilolit dengan beberapa asesoris seperti modernit dan kuarsa (Gambar 1). Hasil foto SEM menunjukkan klinoptilolit berbentuk pelat dan bilah ephedra, dengan panjang beberapa mikron dan tebal 1-2 mikron. Sebagian besar kristal menampilkan karakteristik simetri monoklinik yang khas dan banyak juga yang berbentuk seperti kotak peti. Serat modernit juga teramati dimana benang tipis terletak di atas dan menyilang pada pelat klinoptilolit. Selain itu, lapisan fibrosa juga terlihat pada pelat klinoptilolit (Gambar 2).

Sampel zeolit alam yang diperoleh dipanaskan pada suhu  $400\text{ }^\circ\text{C}$  selama 6 jam untuk menghilangkan air yang terserap. Sampel zeolit alam memiliki tekstur yang paling lembut dan halus dibandingkan dengan sampel lainnya. Selain itu, sampel zeolit alam memiliki warna putih kecoklatan (Gambar 4). Sebanyak 20 mg zeolit alam masing-masing digunakan untuk adsorpsi metilen biru dengan berbagai variasi konsentrasi. Zeolit memiliki situs aktif yang banyak sehingga memiliki kemampuan adsorpsi yang tinggi.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-X zeolit alam Nanggung



Gambar 2. Foto SEM zeolit alam Nanggung



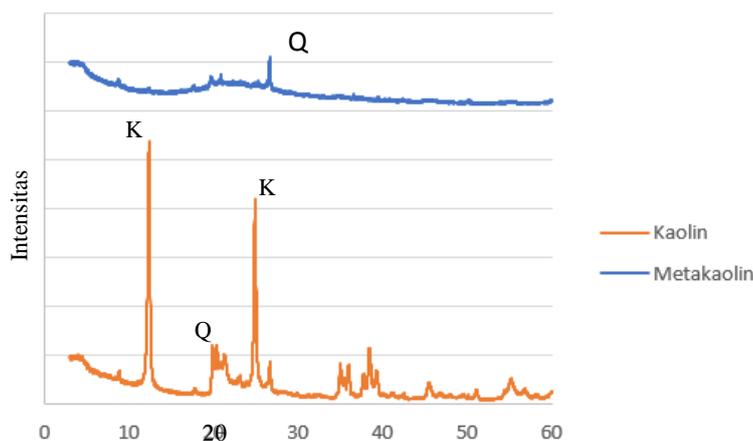
Gambar 4. Sampel (a) zeolit alam serbuk (b) geopolimer serbuk (c) komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) (d) zeolit + geopolimer (*physical mixing*) (e) komposit zeolit-geopolimer granul besar

**Analisa Metakaolin**

Penelitian ini menggunakan metakaolin untuk membentuk sampel komposit zeolit-geopolimer dan geopolimer. Metakaolin diperoleh dari hasil kalsinasi kaolin pada suhu sekitar 550-950 °C sehingga terjadi dehidroksilasi dan membentuk struktur baru (Sunardi *et al.*, 2020). Prekursor kaolin yang digunakan berasal dari Bangka Belitung, Indonesia. Prekursor kaolin kemudian dikalsinasi dan dihasilkan metakaolin yang digunakan.

Metakaolin sendiri memiliki kemampuan adsorpsi namun tidak setinggi zeolit.

Kaolin dan metakaolin yang diperoleh dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X. Pola difraksi sinar-X kaolin menunjukkan kaolin memiliki struktur kristalin yang diindikasikan dengan banyaknya puncak tajam. Berdasarkan pola difraksi sinar-X, kaolin mengandung kaolinit yang terlihat pada sudut 2θ sekitar 12,36° dan 24,93° (ICDD 01-083-0971) serta kuarsa yang terlihat pada sudut 2θ sekitar 26,62° (ICDD 00-005-0490) (Gambar 3).



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X metakaolin

Pola difraksi sinar-X metakaolin menunjukkan bahwa metakaolin memiliki struktur nonkristalin atau amorf terlihat pada puncak melebar yang berada pada rentang sekitar  $15-30^\circ$ . Puncak tajam terlihat pada sudut  $2\theta$  sekitar  $26.65^\circ$  yang dapat diindikasikan sebagai kuarsa (ICDD 00-005-0490). Puncak tajam tersebut menunjukkan bahwa metakaolin mengandung sedikit kuarsa yang tidak bereaksi saat proses kalsinasi (Ge *et al.*, 2015). Proses kalsinasi kaolin menjadi metakaolin terbukti efektif dengan terjadinya perubahan struktur kristalin menjadi amorf

Prekursor metakaolin memiliki warna putih pucat dan tekstur yang lembut serta halus seperti sampel zeolit alam. Prekursor metakaolin berfungsi dalam pembentukan geopolimer karena memiliki reaktivitas dan kemurnian yang tinggi dibandingkan prekursor lainnya seperti fly ash atau tanah liat alam (Papa *et al.*, 2017). Pada penelitian ini, metakaolin dikompositkan dengan zeolit alam dan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) untuk menghasilkan komposit yang memiliki daya tahan yang kuat dan kemampuan adsorpsi yang tinggi.

#### Analisa Geopolimer, Komposit Zeolit-Geopolimer, dan Zeolit-Geopolimer (*Physical Mixing*)

Sampel geopolimer memiliki tekstur paling kasar dibandingkan sampel serbuk lainnya dan memiliki warna putih terang. Sampel komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) memiliki tekstur yang lebih kasar dibandingkan dengan zeolit alam namun lebih lembut dibandingkan sampel geopolimer. Sampel komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) memiliki warna paling coklat dibandingkan sampel serbuk lainnya (Gambar 4).

Sampel zeolit + geopolimer (*Physical Mixing*) merupakan campuran antara zeolit dan geopolimer secara fisika. Sampel tersebut memiliki tekstur yang mirip dengan tekstur zeolit alam dan geopolimer. Sampel tersebut juga memiliki warna yang tidak jauh berbeda dengan sampel zeolit alam namun sedikit lebih cerah. Adapun sampel komposit zeolit-geopolimer granul besar memiliki bentuk seperti bola dengan warna coklat kehitaman (Gambar 4). Sampel komposit granul zeolit-geopolimer memiliki ketahanan yang baik apabila direndam dalam lingkungan perairan. Sampel tidak akan hancur karena memiliki struktur yang rigid sehingga penggunaan sampel ini sangat aplikatif.

Geopolimer dibentuk dengan mereaksikan bahan baku aluminosilikat dengan alkali yang berfungsi sebagai pengaktif. Pada penelitian ini digunakan metakaolin sebagai sumber aluminosilikat dan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) sebagai alkali. Menurut Rizky *et al.* (2022), reaksi kimia yang terjadi saat pembentukan geopolimer yaitu polimerisasi yang membentuk satu molekul besar dengan gugus fungsi banyak. Geopolimer yang berasal dari metakaolin akan memiliki kemampuan adsorpsi, namun kemampuan adsorpsinya tidak sebaik zeolit. Hal tersebut dapat terlihat pada kurva hasil adsorpsi pada metilen biru (Gambar 5). Geopolimer memiliki situs aktif yang lebih sedikit ketika dibandingkan dengan zeolit.

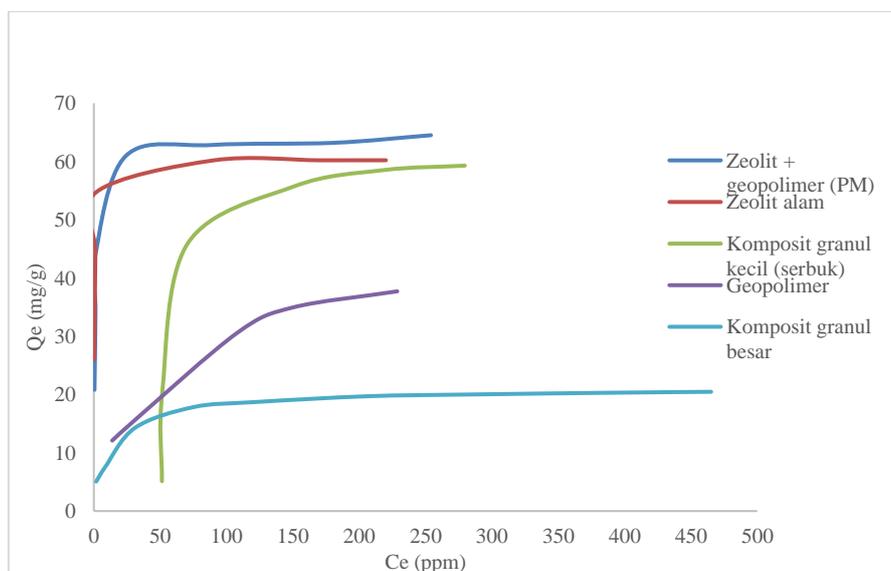
Komposit granul zeolit-geopolimer dibentuk dari percampuran antara zeolit dengan geopolimer secara kimia. Pembentukan komposit granul tersebut menghasilkan material adsorben yang memiliki kemampuan adsorpsi tidak lebih baik dibandingkan bahan asalnya (zeolit), namun dapat digunakan lebih aplikatif. Berikut merupakan mekanisme pembentukan komposit granul zeolit-geopolimer.

Zeolit yang memiliki situs aktif yang lebih banyak dibandingkan geopolimer akan memiliki kemampuan adsorpsi yang lebih tinggi. Zeolit yang dicampurkan dengan geopolimer secara kimia akan menghasilkan komposit dengan situs aktif yang lebih sedikit. Hal tersebut disebabkan geopolimer akan menutupi seluruh situs aktif yang terbentuk berada di dalam granul dan menutup sebagian situs aktif pada permukaan granul (Gambar 6). Akibatnya, kemampuan adsorpsi komposit granul zeolit-geopolimer akan lebih rendah dibandingkan dengan kemampuan adsorpsi zeolit.

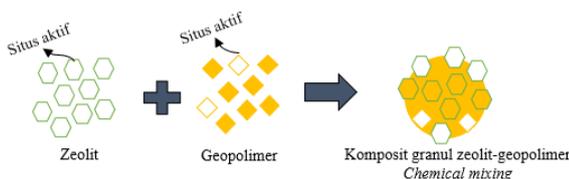
Lain halnya dengan sampel zeolit + geopolimer yang dicampurkan secara fisika (*physical mixing*). Sampel tersebut menghasilkan material adsorben yang memiliki kemampuan adsorpsi yang tinggi. Zeolit yang dicampurkan dengan geopolimer secara fisika tidak akan tertutupi situs aktifnya. Situs aktif akan bertambah akibat penambahan geopolimer yang memiliki sedikit kemampuan adsorpsi (Gambar 7). Akibatnya, zeolit + geopolimer (*physical mixing*) memiliki kemampuan adsorpsi paling tinggi di antara sampel lainnya. Kemampuan adsorpsi dari setiap sampel dapat terlihat pula pada kapasitas adsorpsi ( $Q_m$ ) yang ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1 Hasil analisis model isoterm Langmuir dan Freundlich

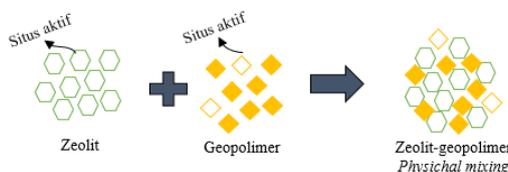
Sampel	Parameter Langmuir			Parameter Freundlich		
	Qm	K	R <sup>2</sup>	n	K	R <sup>2</sup>
Zeolit Serbuk	61.0742	2.4379	0.9737	12.8795	6.4202	0.6932
Geopolimer Serbuk	46.0834	0.0194	0.9835	2.3929	29.1429	0.9783
Komposit Zeolit/Geopolimer Granul Besar	20.8510	0.0777	0.9737	4.8813	8150.1	0.9026
Komposit Zeolit/Geopolimer Granul Kecil (Serbuk)	52.6828	0.3433	0.9953	1.7056	4.5389	0.6905
Zeolit + Geopolimer (PM)	63.7347	1.2568	0.9513	8.4249	1.1526	0.8232



Gambar 5. Kurva hasil adsorpsi metilen biru



Gambar 6. Mekanisme pembentukan komposit granul zeolit-geopolimer



Gambar 7. Mekanisme pembentukan zeolit + geopolimer (*physical mixing*)

### Adsorpsi Metilen Biru

Sampel-sampel kemudian diuji kemampuan adsorpsinya pada metilen biru dengan berbagai perbandingan konsentrasi dari 25 sampai 600 ppm selama 24 jam. Hasil pengujian diukur absorbansinya menggunakan spektrofotometri UV-Vis dan hasil pengukurannya dianalisis menggunakan perangkat lunak Origin. Hasil pengukuran absorbansi kemudian dianalisis disesuaikan dengan model isoterm Langmuir dan Freundlich. Hasil analisis menunjukkan kurva adsorpsi lebih sesuai dengan model isoterm Langmuir. Hal tersebut dapat terlihat dari R<sup>2</sup> yang dihasilkan dari model isoterm Langmuir lebih besar dibandingkan model isoterm Freundlich (Tabel 1).

Parameter Qm pada isoterm Langmuir merupakan kapasitas adsorpsi dari adsorben. K merupakan konstanta

baik pada isoterm Langmuir maupun isoterm Freundlich yang dapat dibandingkan dengan intensitas adsorpsi. Parameter n pada isoterm Freundlich merupakan parameter yang menunjukkan afinitas adsorpsi dari satu adsorbat ke adsorbat lainnya (Belhachemi dan Addoun 2011; Okeola dan Odeunmi 2010).

Hasil analisis model isoterm menunjukkan bahwa kemampuan adsorpsi dari zeolit + geopolimer (PM) memiliki kemampuan adsorpsi terbesar dibandingkan dengan sampel lainnya dengan kapasitas adsorpsi (Qm) sebesar 63,73 mg/g. Sampel kedua yang memiliki kemampuan adsorpsi terbesar yakni zeolit serbuk dengan kapasitas adsorpsi (Qm) sebesar 61,07 mg/g (Tabel 1).

Sampel komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) memiliki kapasitas adsorpsi (Qm) sebesar 52,68 mg/g. Komposit zeolit-geopolimer granul besar memiliki kapasitas adsorpsi (Qm) sebesar 20,85 mg/g yang

merupakan kapasitas adsorpsi terendah di antara sampel lainnya (Tabel 1). Perbedaan kemampuan adsorpsi kedua sampel komposit disebabkan adanya perbedaan luas permukaan antar sampel. Kecepatan adsorpsi antara keduanya pun dapat terlihat dari Gambar 5 yang menunjukkan bahwa komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) memiliki kecepatan adsorpsi yang lebih besar dibandingkan dengan komposit zeolit-geopolimer granul besar. Hal tersebut juga disebabkan akibat perbedaan luas permukaan antara keduanya.

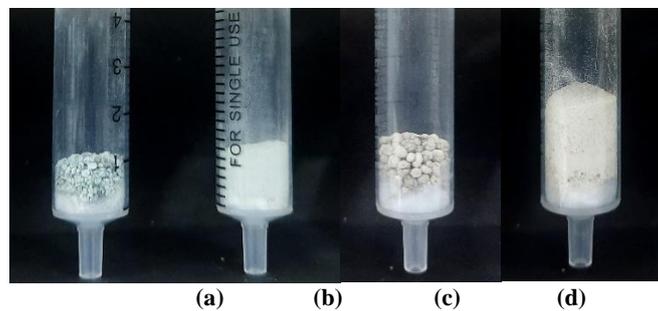
Geopolimer yang berasal dari metakaolin dan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) juga memiliki kemampuan adsorpsi. Hanya saja, kemampuan adsorpsi geopolimer masih lebih rendah dibandingkan dengan kemampuan adsorpsi zeolit. Sampel geopolimer serbuk yang dihasilkan memiliki kapasitas adsorpsi kedua terendah yakni sebesar 46,08 mg/g (Tabel 1). Kurva adsorpsi geopolimer juga menunjukkan bahwa kecepatan adsorpsi dari geopolimer

merupakan yang paling lambat dibandingkan dengan sampel lainnya. Hal tersebut terlihat dari kurva yang naik sedikit melandai (Gambar 5).

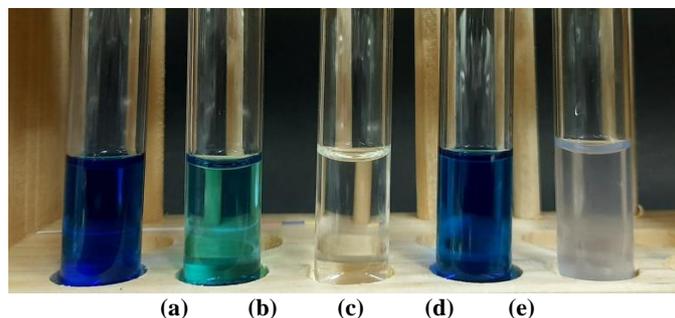
Simulasi penggunaan sampel pada filter pengolahan air limbah juga dilakukan. Zeolit alam serbuk dan granul, serta komposit zeolit-geopolimer granul besar maupun kecil (serbuk) digunakan pada simulasi tersebut (Gambar 8). Metilen biru dengan konsentrasi 25 ppm dialirkan pada filter yang telah diberi 1 g masing-masing sampel. Hasil menunjukkan bahwa zeolit serbuk dan komposit granul kecil (serbuk) memiliki kemampuan adsorpsi yang lebih baik dibandingkan zeolit granul dan komposit granul besar (Gambar 9). Namun, proses pengaliran metilen biru untuk zeolit serbuk dan komposit granul kecil (serbuk) berlangsung lebih lama akibat menyumbat aliran metilen biru dibandingkan zeolit granul dan komposit granul besar (Tabel 2).

Tabel 2. Simulasi filter pengolahan pewarna metilen biru 25 ppm

Sampel	Waktu Pengaliran (detik)
Zeolit alam serbuk	1846
Zeolit alam granul	16
Komposit zeolit-geopolimer granul kecil	960
Komposit zeolit-geopolimer granul besar	45



Gambar 8. Sampel (a) zeolit alam granul, (b) zeolit alam serbuk, (c) komposit zeolit-geopolimer granul besar, dan (d) komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) pada simulasi filter pengolahan limbah pewarna



Gambar 9. Hasil pengaliran (a) metilen biru 25 ppm pada sampel (b) zeolit alam granul, (c) zeolit alam serbuk, (d) komposit zeolit-geopolimer granul besar, dan (e) komposit zeolit-geopolimer granul besar

### Mekanisme Reaksi Adsorpsi Metilen Biru

Sampel-sampel yang berasal dari bahan baku aluminosilikat memiliki kemampuan adsorpsi karena memiliki pori atau situs aktif adsorpsi sehingga limbah pewarna dapat teradsorpsi ke dalamnya. Zeolit yang terdiri dari  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$  tetrahedral memiliki muatan negatif pada permukaannya. Muatan negatif tersebut dapat berinteraksi dengan muatan positif yang dimiliki oleh zat pewarna (Rida *et al.* 2013).

Hasil pengujian yang lebih sesuai dengan model isoterm Langmuir diasumsikan memiliki situs adsorpsi

monolayer dan seragam. Selain itu, diasumsikan pula tidak terjadi interaksi antar adsorbat yang teradsorpsi. Situs adsorpsi pada adsorben juga terbatas sehingga akan terjadi waktu jenuh ketika semua situs adsorpsi telah terisi. Situs adsorpsi yang telah terisi mengindikasikan bahwa sudah tidak terjadi lagi proses adsorpsi (Belhachemi dan Addoun 2011).

Sampel zeolit alam, komposit zeolit-geopolimer, dan zeolit + geopolimer (PM) memiliki kecepatan adsorpsi yang sangat tinggi terlihat pada kurva yang meningkat tajam pada konsentrasi rendah dan mencapai waktu jenuh pada konsentrasi yang masih cukup rendah. Adapun sampel

geopolimer memiliki kecepatan adsorpsi yang lebih rendah dibandingkan dengan sampel lainnya. Hal tersebut terlihat pada kurva yang naik perlahan seiring dengan meningkatnya konsentrasi metilen biru (Gambar 5).

Waktu jenuh dapat terlihat pada kurva adsorpsi yang mulai mendatar (Gambar 5). Pada periode awal waktu, proses penyerapan warna metilen biru terjadi sangat cepat dan lambat laun melambat seiring dengan bertambahnya waktu kontak. Molekul pewarna metilen biru yang memiliki gugus kationik (Dogan *et al.* 2004) akan berinteraksi dengan gugus anionik dari adsorben yang berasal dari bahan baku aluminosilikat. Molekul pewarna akan bergerak ke permukaan adsorben dan akan berinteraksi dengan situs aktif adsorpsi permukaan sampel.

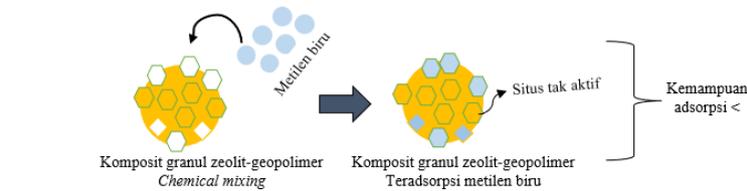
Sampel komposit zeolit-geopolimer yang berbentuk granul memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi yang lebih kecil dibandingkan sampel lainnya. Sampel tersebut terbentuk melalui pencampuran kedua bahan baku secara kimia. Akibatnya, situs aktif yang dimiliki zeolit sebagai prekursor akan tertutupi oleh geopolimer sehingga kemampuan adsorpsi menjadi lebih kecil. Situs aktif tersebut akan menjadi adsorbat bagi metilen biru (Gambar 10).

Sampel komposit zeolit-geopolimer yang dibentuk menjadi granul besar dan kecil (serbuk) juga akan memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi yang berbeda. Komposit granul besar memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi lebih rendah dibandingkan komposit granul (kecil). Hal tersebut dikarenakan kedua komposit memiliki luas permukaan

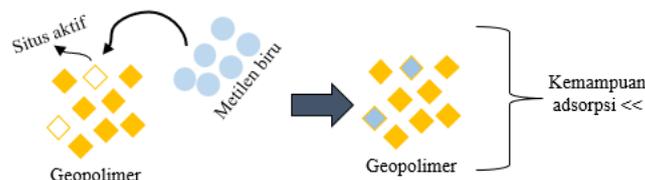
yang berbeda. Komposit granul kecil (serbuk) memiliki luas permukaan lebih besar dibandingkan komposit granul besar sehingga akan memiliki jumlah situs aktif yang lebih banyak.

Sampel geopolimer yang menggunakan metakaolin sebagai prekursor nya juga memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi. Geopolimer hanya memiliki sedikit situs aktif sehingga memiliki kemampuan adsorpsi yang lebih rendah dibandingkan sampel lainnya. Sampel geopolimer yang berbentuk serbuk masih memiliki situs aktif yang lebih banyak dibandingkan dengan komposit zeolit-geopolimer granul besar akibat memiliki luas permukaan lebih besar, sehingga kemampuan adsorpsinya lebih baik dibandingkan sampel komposit zeolit-geopolimer granul besar (Gambar 11).

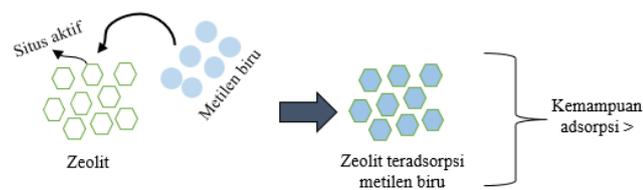
Sampel zeolit serbuk memiliki situs aktif yang banyak akibat memiliki luas permukaan yang besar. Situs aktif yang banyak akan membuat zeolit memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi yang besar, sehingga membuat metilen biru banyak terjerap pada sampel zeolit (Gambar 12). Sampel zeolit-geopolimer (PM) memiliki kapasitas/kemampuan adsorpsi paling tinggi dibandingkan dengan sampel lainnya. Sampel tersebut memiliki situs aktif paling banyak akibat penambahan zeolit dengan geopolimer yang masing-masingnya memiliki situs aktif tersendiri dan tidak saling menutupi. Situs aktif yang banyak juga disebabkan bentuk sampel yang berbentuk serbuk sehingga memiliki luas permukaan yang besar (Gambar 13).



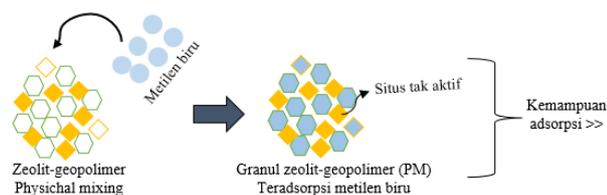
Gambar 10. Mekanisme adsorpsi komposit granul zeolit-geopolimer pada metilen biru



Gambar 11. Mekanisme adsorpsi metilen biru pada geopolimer



Gambar 12. Mekanisme adsorpsi metilen biru pada zeolite



Gambar 13. Mekanisme adsorpsi metilen biru pada zeolit + geopolimer (PM)

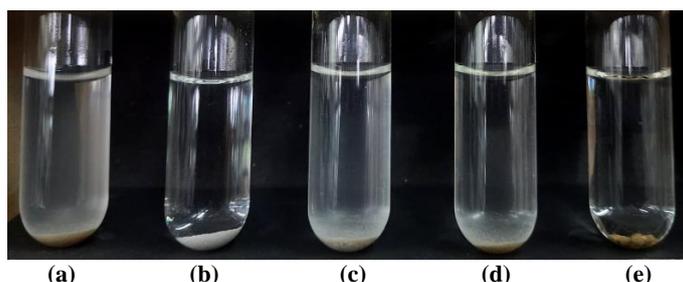
### Aplikasi Pengolahan Limbah Pewarna

Komposit zeolit-geopolimer granul yang telah terbukti memiliki kemampuan sebagai adsorben dapat digunakan pada limbah industri tekstil yaitu limbah pewarna. Sampel yang terdiri atas zeolit alam, geopolimer, komposit zeolit-geopolimer, dan zeolit + geopolimer (PM) terbukti memiliki kemampuan adsorpsi. Hasil perbandingan kemampuan adsorpsi menunjukkan bahwa sampel zeolit alam dan zeolit + geopolimer (PM) memiliki kemampuan adsorpsi tertinggi, namun sampel komposit zeolit-geopolimer baik granul kecil (serbuk) maupun granul besar tidak berbeda jauh dalam hal kemampuan adsorpsinya.

Sampel-sampel yang digunakan diuji ketahanannya dengan direndam dan dikocok dalam air. Hasil pengujian tersebut menunjukkan sampel zeolit alam, dan zeolit + geopolimer (PM) tidak tahan dalam air terlihat dari air yang berubah menjadi keruh. Sampel komposit zeolit-geopolimer granul kecil sedikit tahan terlihat dari air

yang sedikit keruh. Sampel geopolimer dan komposit zeolit-geopolimer granul besar memiliki ketahanan dalam air yang terlihat dari air yang tidak menjadi keruh (Gambar 14).

Komposit granul zeolit-geopolimer yang telah diuji kemampuan adsorpsinya dengan merendam dan mengocoknya dalam metilen biru membuktikan bahwa sampel tersebut tidak akan mudah hancur dalam lingkungan perairan terutama pada limbah pewarna. Komposit granul zeolit-geopolimer yang memiliki ketahanan yang baik dalam lingkungan perairan dinilai lebih aplikatif dibandingkan dengan sampel lainnya. Komposit granul zeolit-geopolimer tidak hancur apabila direndam dalam perairan, sehingga ketika proses adsorpsi limbah selesai maka sampel dapat dengan mudah dipisahkan dari perairan. Selain itu, proses sintesis komposit zeolit-geopolimer yang mudah dan berasal dari bahan baku murah menjadikan bahan ini lebih ekonomis.



Gambar 14. Uji ketahanan sampel (a) zeolit alam serbuk (b) geopolimer serbuk (c) zeolit + geopolimer (*physical mixing*) (d) komposit zeolit-geopolimer granul kecil (serbuk) (e) komposit zeolit-geopolimer granul besar dalam air

### SIMPULAN

Komposit disintesis dengan mencampurkan zeolit, metakaolin, dan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ), kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu  $100\text{ }^\circ\text{C}$  selama 2 jam. Sampel-sampel yang digunakan kemudian diuji adsorpsi pada metilen biru. Hasil pengujian adsorpsi menunjukkan bahwa komposit granul zeolit-geopolimer memiliki kemampuan adsorpsi sebesar  $52.68\text{ mg/g}$  untuk granul kecil dan  $20.85\text{ mg/g}$  untuk granul besar sehingga dapat diaplikasikan pada lingkungan perairan.

### DAFTAR PUSTAKA

- Agustina, T.E. dan M. Amir. 2012. Pengaruh temperature dan waktu pada pengolahan pewarna sintesis procion menggunakan reagen fenton. *Jurnal Teknik Kimia*, 3(18):54-61.
- Belhachemi, M. and F. Addoun. 2011. Comparative adsorption isotherms and modelling of methylene blue onto activated carbons. *Application Water Science*, 1: 111-117. doi: 10.1007/s13201-011-0014-1.
- Dogan, M., M. Alkan, A. Turkyilmaz and Y. Ozdemir. 2004. Kinetics and mechanism of removal of methylene blue by adsorption onto perlite. *Journal of Hazardous Materials*, B109: 141-148. doi:10.1016/j.jhazmat.2004.03.003.
- Fitriani, E. and A. Purbasari. 2021. Application of low-cost mesoporous geopolymer for dye waste removal. *IOP Conference Series: Material Science and Engineering*. doi: 10.1088/1757-899X/1053/1/012002.
- Ge, Y., X. Cui, Y. Kong, Z. Li, Y. He and Q. Zhou. 2015. Porous geopolymeric spheres for removal of Cu(II) from aqueous solution: synthesis and evaluation. *Journal of Hazardous Materials*, 283: 244-251. doi:10.1016/j.jhazmat.2014.09.038.
- He, P.Y., Y.J. Zhang, H. Chen, Z.C. Han and L.C. Liu. 2020. Low-cost and facile synthesis of geopolymer-zeolite composite membrane for chromium(VI) separation from aqueous solution. *Journal of Hazardous Materials*, 392(13): 1-43. doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122359.
- Kuang, Y., X. Zhang and S. Zhou. 2020. Adsorption of methylene blue in water onto activated carbon by surfactant modification. *Water*, 12(587): 1-19. doi: 10.3390/w12020587.
- Liu, Y., Y. Kang, B. Mu and A. Wang. 2014. Attapulgite/bentonite interactions for methylene blue adsorption characteristics from aqueous solution. *Chemical Engineering Journal*, 237: 403-410. doi: 10.1016/j.cej.2013.10.048.
- Lolo, E.U. dan Y.S. Pambudi. 2020. Penurunan parameter pencemar limbah cair industri tekstil secara koagulasi flokulasi. *Serambi Engineering*, 5(3): 1090-1098. ISSN 2541-1934.

- Meili, L., P.V.S. Lins, M.T. Costa, R.L. Almeida, A.K.S. Abud, J.I. Soletti, G.L. Dotto, E.H. Tanabe, L. Sellaoui, S.H.V. Carvalho and A. Erto. 2018. Adsorption of methylene blue on agroindustrial wastes: experimental investigation and phenomenological modelling. *Progress in Biophysics and Molecular Biology*, 2019 Jan: 141:60-71. doi: 10.1016/j.pbiomolbio.2018.07.011.
- Moshoeshoe, M., M.S. Nadiye-Tabbiruka and V. Obuseng. 2017. A review of the chemistry, structure, properties and applications of zeolites. *American Journal of Materials Science*, 7(5): 196-221. doi:10.5923/j.materials.20170705.12.
- Okeola, F.O. and E.O. Odebunmi. 2010. Freundlich and Langmuir isotherms parameters for adsorption of methylene biru by activated carbon derived from agrowastes. *Advances in Natural and Applied Sciences*, 4(3): 281-288. ISSN 1995-0748.
- Parapaga, R.T., A.N. Sarajar dan R.I.R. Legrans. 2018. Pengaruh penambahan zeolite terhadap kuat geser pada tanah berlempung. *Jurnal Sipil Statik*, 6(7): 501-509. ISSN: 2337-6732.
- Ramadhy, W.F., W. Rahmalia dan T. Usman. 2020. Preparasi dan karakterisasi komposit TiO<sub>2</sub>/metakaolin teraktivasi KOH dalam Upaya menurunkan energi celah pita pada anoda TiO<sub>2</sub>. *Positron*, 10(1): 19-26. doi: 10.26418/positron.v10i1.36703.
- Rida, K., S. Bouraoui and S. Hadnine. 2013. Adsorption of methylene blue from aqueous solution by kaolin and zeolite. *Applied Clay Science*, 83-84: 99-105. doi:10.1016/j.clay.2013.08015.
- Rizky, M., A.W. Ketut dan N. Dwi. 2022. Perbandingan Metode Pembuatan Beton Geopolimer Terhadap Sifat Mekanik dan Porositas. *Jurnal Teknik Sipil*, 8(1): 136-147. ISSN 2549-3973.
- Sanguanpak, S., A. Wannagon, C. Saengam, W. Chiemchaisri and C. Chiemchaisri. 2021. Porous metakaolin-based geopolymer granules for removal of ammonium in aqueous solution and anaerobically pretreated piggery wastewater. *Journal of Cleaner Production*, 297: 1-12. doi:10.1016/j.jclepro.2021.126643.
- Sunardi, L. Nofianti dan U. Irawati. 2020. Pengaruh penambahan *template* polietilen glikol terhadap karakter  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari kaolin. *Jurnal Fisika Flux*, 17(1): 50-58. ISSN 1829-796X.
- Tome, S., D.T. Hermann and V.O. Shikuku. 2021. Synthesis, characterization and application of acid and alkaline activated volcanic ash-based geopolymers for adsorptive remotion of cationic and anionic dyes from water. *Ceramics International*, 47(15): 20965-20973. doi: 10.1016/j.ceramint.2021.04.097.
- World Bank Group. 2016. *World Development Indicators*. The World Bank. Washington DC. doi: 10.1596/978-1-4648-0683-4.
-