

**Adsorpsi *Congo red* pada Granul Alumino Silico Phosphate  
(GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi  
Adsorbat**

**SKRIPSI**

**Oleh:**

**FILIPUS ADIMAS DWI CAHYO  
155090200111031**



**JURUSAN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
UNIVERSITAS BRAWIJAYA  
MALANG  
2019**

**Adsorpsi *Congo red* pada Granul Alumino Silico Phosphate  
(GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi  
Adsorbat**

**SKRIPSI**

Sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar  
Sarjana Sains dalam bidang Kimia

Oleh:

**FILIPUS ADIMAS DWI CAHYO**  
**155090200111031**



**JURUSAN KIMIA**  
**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM**  
**UNIVERSITAS BRAWIJAYA**  
**MALANG**  
**2019**

# LEMBAR PENGESAHAN SKRIPSI

**Adsorpsi Congo red pada Granul Alumino Silico Phosphate (GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi Adsorbat**

Oleh:

**FILIPUS ADIMAS DWI CAHYO**  
**155090200111031**

Setelah diseminarkan di depan Majelis Penguji pada tanggal .....**24 JUN 2019** dan dinyatakan memenuhi syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Sains dalam bidang Kimia.

Pembimbing I

Pembimbing II

Drs. Dinar Purwonugroho, M.Si  
NIP. 19600610 1982031 002

Dra. Sri Wardhani, M.Si  
NIP. 19680226 1992032 001



Mengetahui  
Ketua Jurusan Kimia

Masruki, S.Si, M.Si, Ph.D.  
NIP. 19731020 2002121 001

## LEMBAR PERNYATAAN

Saya yang bertandatangan di bawah ini:

Nama : Filipus Adimas Dwi Cahyo  
NIM : 155090200111031  
Jurusan : Kimia  
Penulis Skripsi Berjudul :

**Adsorpsi Congo red pada Granul Alumino Silico Phosphate (GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi Adsorbat**

Dengan ini menyatakan bahwa :

1. Isi dari skripsi yang saya buat adalah benar-benar karya sendiri dan tidak menjiplak karya orang lain, selain nama-nama yang tercantum di isi dan tertulis di daftar pustaka dalam skripsi ini.
2. Apabila di kemudian hari ternyata skripsi yang saya tulis terbukti hasil jiplakan, maka saya akan bersedia menanggung segala resiko yang akan saya terima.

Demikian pernyataan ini dibuat dengan segala kesadaran.

Malang, 24 Juni 2019  
Yang menyatakan



Filipus Adimas Dwi Cahyo  
155090200111031

## Adsorpsi *Congo red* pada Granul Alumino Silico Phosphate (GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi Adsorbat

### ABSTRAK

Penelitian tentang adsorpsi *Congo red* pada Granul Alumino Silico Phosphate (GASP) telah dilakukan. Tujuan penelitian ini adalah mengkaji pengaruh waktu kontak, pH, dan konsentrasi adsorbat terhadap adsorpsi *Congo red* pada GASP. Adsorben GASP dibuat melalui tiga tahapan, yaitu aktivasi zeolit, fosfatasi zeolit, dan granulasi zeolit terfosfatasi. Aktivasi zeolit alam dilakukan menggunakan larutan HCl 0,4 M. Fosfatasi zeolit dilakukan dengan cara memanaskan dalam tanur campuran homogen zeolit aktif dan  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  dengan berbagai rasio Si/P pada suhu 235 °C selama 5 jam. Adsorben zeolit terfosfatasi yang memiliki daya adsorpsi tertinggi diamobilisasi dalam gel kalsium alginat untuk memperoleh GASP. Keberhasilan fosfatasi zeolit alam dievaluasi berdasarkan spektra FTIR. Adsorpsi dengan metode *batch* menggunakan 0,1 g adsorben GASP dan 25 mL larutan *Congo red* dilakukan dengan variasi waktu kontak 15-120 menit, pH 3-9, dan konsentrasi adsorbat 10-60 mg/L. Jumlah *Congo red* yang teradsorpsi diperoleh secara tidak langsung dengan menentukan konsentrasi adsorbat sisa menggunakan spektrofotometer sinar tampak pada 498 nm. Hasil penelitian menunjukkan bahwa zeolit alam dapat terfosfatasi ditandai dengan munculnya bilangan gelombang baru pada spektra FTIR zeolit terfosfatasi yaitu  $1137,92\text{ cm}^{-1}$ ,  $960,48\text{ cm}^{-1}$ , dan  $576,68\text{ cm}^{-1}$ , yang merupakan bilangan gelombang vibrasi ulur P-O, dan didukung oleh pergeseran bilangan gelombang vibrasi ulur Si-O atau Al-O dari  $1222,79\text{ cm}^{-1}$  menjadi  $1205,43\text{ cm}^{-1}$ , dan dari  $777,26\text{ cm}^{-1}$  menjadi  $767,62\text{ cm}^{-1}$ . Adanya  $\text{PO}_4^{+}$  pada kerangka zeolit meningkatkan daya adsorpsinya terhadap *Congo red*. Waktu kontak, pH, dan konsentrasi adsorbat berpengaruh nyata terhadap adsorpsi *Congo red* pada GASP. Kondisi optimum adsorpsi tercapai pada waktu kontak 30 menit dan pH 5. Kapasitas adsorpsi GASP terhadap *Congo red* pada kondisi optimum adsorpsi tersebut diketahui sebesar 4,67 mg/g.

Kata kunci: *Congo red*, zeolit, fosfatasi, granul, *batch*.

## Adsorption of *Congo red* using *Alumino Silico Phosphate Granules (GASP)*: The Study of Contact Time, pH, and Concentration of Adsorbate

### ABSTRACT

Research on Congo red adsorption on Alumino Silico Phosphate Granule (GASP) was carried out. The purpose of this study was to examine the effect of contact time, pH, and concentration of adsorbate on Congo red adsorption on GASP. GASP adsorbent was made through three stages, namely zeolite activation, zeolite phosphation, and granulation of phosphate zeolite. Natural zeolite was activated by using 0.4 M HCl solution. Zeolite phosphations were done by heating a homogeneous mixture of active zeolite and  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  with various Si/P ratios at 235 °C for 5 hours. The phosphated zeolite adsorbent which had the highest adsorption power was immobilized in calcium alginate gel to obtain GASP. The success of natural zeolite phosphatation was evaluated according to FTIR spectra. Batch adsorption experiments using 0,1 g of GASP adsorbent and 25 mL of Congo red solution were carried out with variations in contact time of 15-120 minutes, pH of 3-9, and adsorbate concentration of 10-60 mg/L. The amount of Congo red adsorbed was obtained indirectly by determining the residual adsorbate concentration using a visible spectrophotometer at 498 nm. The results showed that natural zeolite could be phosphated marked by the emergence of new wave numbers in the phosphated zeolite FTIR spectra, i.e.  $1137.92\text{ cm}^{-1}$ ,  $960.48\text{ cm}^{-1}$ , and  $576.68\text{ cm}^{-1}$ , which were P-O stretching vibration, and supported by shifting stretching vibration of Si-O or Al-O from  $1222.79\text{ cm}^{-1}$  to  $1205.43\text{ cm}^{-1}$  and from  $777.26\text{ cm}^{-1}$  to  $767.62\text{ cm}^{-1}$ . The existence of  $\text{PO}_4^+$  on the zeolite framework increased its adsorption capability. Contact time, pH, and concentration of adsorbate significantly affected Congo red adsorption on GASP. The optimum condition of adsorption was reached at 30 minutes contact time and pH 5. The adsorption capacity of GASP toward Congo red at the optimum adsorption conditions was known to be 4.67 mg/g.

Keywords : Congo red, zeolite, phosphatation, granules, batch.

## KATA PENGANTAR

Puji syukur kehadirat Tuhan Yang Maha Esa atas limpahan kasih dan karunia-Nya sehingga skripsi yang berjudul **Adsorpsi Congo red pada Granul Alumino Silico Phosphate (GASP): Kajian Waktu Kontak, pH, dan Konsentrasi Adsorbat** dapat tersusun dan terselesaikan dengan baik. Penulis ingin mengucapkan terimakasih kepada pihak-pihak yang telah membantu penulis untuk menyelesaikan skripsi ini. Ucapan terimakasih ditujukan kepada:

1. Drs. Danar Purwonugroho, M.Si selaku pembimbing I dan Dra. Sri Wardhani, M.Si selaku Pembimbing II yang telah banyak memberikan bimbingan, saran, perhatian dan doa selama penyusunan skripsi ini.
2. Dr. Sasangka Prasetyawan, MS selaku penasehat akademik yang telah memberikan semangat, dukungan dan masukan.
3. Siti Mutrofin, S.Si., M.Sc selaku dosen peninjau seminar proposal dan kemajuan yang telah memberikan saran.
4. Masruri, S.Si, M.Si, Ph.D, selaku Ketua Jurusan Kimia dan segenap staf pengajar Jurusan Kimia atas semua bimbingan, bantuan dan ilmu yang telah diberikan.
5. Kedua orang tua penulis, Sufiendito Boaz dan Kuminarsih serta segenap keluarga besar atas segala dukungan mental, moral, dan material dalam menyelesaikan skripsi ini.
6. Teman-teman satu kelompok penelitian Laboratorium Anorganik, Silvia Rahmawati, Fahmi Firdaus, dan Dian Arlantika serta Kimia 2015, atas semua bantuan, dukungan, motivasi dan sehingga skripsi ini dapat diselesaikan.
7. Seluruh pihak dan instansi yang membantu terselesaikannya penelitian dan skripsi ini.

Penulis menyadari bahwa skripsi ini masih jauh dari sempurna. Oleh karena itu penulis mengharapkan kritik dan saran guna perbaikan dan penyempurnaan sehingga dapat bermanfaat bagi pihak yang membaca.

Malang, 24 Juni 2019

Penulis



## DAFTAR ISI

<b>HALAMAN JUDUL</b>	i
<b>HALAMAN PENGESAHAN SKRIPSI</b>	ii
<b>HALAMAN PERNYATAAN</b>	iii
<b>ABSTRAK</b>	iv
<b>ABSTRACT</b>	v
<b>KATA PENGANTAR</b>	vi
<b>DAFTAR ISI</b>	vii
<b>DAFTAR GAMBAR</b>	ix
<b>DAFTAR TABEL</b>	xi
<b>DAFTAR LAMPIRAN</b>	xii
<b>DAFTAR ISTILAH DAN LAMBANG</b>	xiv
<b>BAB I PENDAHULUAN</b>	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Perumusan Masalah	3
1.3 Batasan Masalah	3
1.4 Tujuan Penelitian	4
1.5 Manfaat Penelitian	4
<b>BAB II TINJAUAN PUSTAKA</b>	5
2.1 Kimiawi <i>Congo red</i>	5
2.2 Kimiawi Zeolit	5
2.3 Sumber Zeolit Alam	6
2.4 Aktifasi Zeolit	8
2.5 Sifat Amonium Dihidrogen Fosfat	9
2.6 Fosfatasi Zeolit Aktif	9
2.7 Proses Adsorpsi pada Zeolit	10
2.8 Pembuatan Granul <i>Alumino Silico Phosphate</i> (GASP)	14
2.9 Karakterisasi GASP menggunakan FT-IR	17
2.10 Analisa Kuantitatif <i>Congo red</i> Menggunakan Spektrofotometri UV	18
<b>BAB III METODE PENELITIAN</b>	21
3.1 Tempat dan Waktu Penelitian	21
3.2 Alat dan Bahan	21
3.3 Tahapan Penelitian	21
3.4 Prosedur Penelitian	22
3.4.1 Aktivasi Zeolit	22
3.4.2 Fosfatasi Zeolit	22
3.4.3 Uji Daya Adsorpsi	22



3.4.4 Pembuatan granul ASP	22
3.4.5 Penentuan Waktu Kontak Optimum Adsorpsi GASP terhadap <i>Congo red</i>	23
3.4.6 Penentuan pH Optimum Adsorpsi GASP terhadap <i>Congo Red</i>	23
3.4.7 Penentuan Konsentrasi Optimum Adsorpsi GASP terhadap <i>Congo red</i>	24
3.4.8 Pembuatan Kurva Baku	24
3.4.8.1 Penentuan Panjang Gelombang Maksimum <i>Congo red</i> Menggunakan Spektrofotometer UV-VIS	24
3.4.8.2 Pembuatan Kurva Baku <i>Congo red</i>	24
3.4.9 Karakterisasi GASP Menggunakan FT-IR	24
3.4.10 Analisis Data	25
3.4.10.1 Penentuan Konsentrasi <i>Congo red</i> Setelah Adsorpsi	25
3.4.10.2 Penentuan Massa <i>Congo red</i> yang Diserap Pergram Adsorben	25
3.4.10.3 Penentuan Kondisi Optimum	26
3.4.10.4 Penentuan Kapasitas Adsorpsi	26
3.4.10.5 Uji Statistik	27
<b>BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN</b>	30
4.1 Aktivasi Zeolit	30
4.2 Fosfatasi Zeolit	30
4.3 Uji Daya Adsorpsi	32
4.4 Pembuatan granul ASP	33
4.5 Karakterisasi GASP GASP Menggunakan FT-IR	34
4.6 Pengaruh Waktu Kontak terhadap Adsorpsi <i>Congo red</i> pada GASP	38
4.7 Pengaruh pH terhadap Adsorpsi <i>Congo red</i> pada GASP	40
4.8 Pengaruh Konsentrasi <i>Congo red</i> terhadap Kapasitas Adsorpsi pada GASP	41
<b>BAB V KESIMPULAN DAN SARAN</b>	47
5.1 Kesimpulan	47
5.2 Saran	47
<b>DAFTAR PUSTAKA</b>	48
<b>LAMPIRAN</b>	55

## DAFTAR GAMBAR

<b>Gambar 2.1</b> Struktur molekul <i>Congo red</i>	5
<b>Gambar 2.2</b> Model tetrahedral Al/Si	6
<b>Gambar 2.3</b> Struktur kerangka zeolit alam	6
<b>Gambar 2.4</b> Sistem saluran modernit dan klinoptilonit	7
<b>Gambar 2.5</b> Reaksi aktivasi zeolit secara kimia	8
<b>Gambar 2.6</b> Mekanisme substitusi isomorfi	10
<b>Gambar 2.7</b> Mekanisme adsorpsi Langmuir pada permukaan adsorben	12
<b>Gambar 2.8</b> Lapisan tunggal ( <i>monolayer</i> ) pada adsorben	13
<b>Gambar 2.9</b> Grafik hukum Langmuir	14
<b>Gambar 2.10</b> Struktur kimia alginat	14
<b>Gambar 2.11</b> Ikatan ion divalen dengan alginat – model “egg-box”	16
<b>Gambar 2.12</b> Spektra FT-IR zeolit	17
<b>Gambar 2.13</b> Spektra FT-IR $AlPO_4$	18
<b>Gambar 2.14</b> Spektra FT-IR natrium alginat	18
<b>Gambar 2.15</b> Spektra UV <i>Congo red</i>	19
<b>Gambar 2.15</b> Kurva baku hubungan konsentrasi dengan absorbansi	20
<b>Gambar 4.1</b> Grafik hubungan antara rasio Si/P terhadap massa <i>Congo red</i> yang diserap per gram adsorben ASP(q)	32
<b>Gambar 4.2</b> Spektra inframerah zeolit aktif dan ASP 1/6	34
<b>Gambar 4.3</b> Spektra inframerah GASP dan Ca-Alginat	37
<b>Gambar 4.4</b> Grafik hubungan waktu kontak adsorpsi terhadap massa <i>Congo red</i> yang diserap per gram adsorben GASP (q)	39
<b>Gambar 4.5</b> Grafik hubungan pH adsorpsi terhadap massa <i>Congo red</i> yang diserap per gram adsorben GASP (q)	40
<b>Gambar 4.6</b> Grafik hubungan variasi konsentrasi <i>Congo red</i> terhadap massa <i>Congo red</i> yang diserap per gram adsorben GASP (q)	42
<b>Gambar 4.7</b> Grafik massa <i>Congo red</i> yang diserap per gram oleh adsorben berbeda	44
<b>Gambar 4.8</b> Grafik persamaan Langmuir GASP dari	45

konsentrasi *Congo red* setelah proses adsorpsi ( $C_e$ ) terhadap konsentrasi per massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben ( $C_e/q$ )



## DAFTAR TABEL

<b>Tabel 2.1</b> Jenis-jenis zeolit pada batuan sedimen	7
<b>Tabel 3.1</b> Uji statistik adsorpsi <i>Congo red</i> oleh adsorben	27
<b>Tabel 3.2</b> Tabel analisis sidik ragam satu arah	28
<b>Tabel 4.1</b> Interpretasi spektra inframerah zeolit aktif dan ASP 1/6	36
<b>Tabel 4.2</b> Interpretasi spectra inframerah GASP dan Ca- Alginat	37



## DAFTAR LAMPIRAN

<b>Lampiran A. Preparasi Larutan</b>	55
A.1 Pembuatan larutan HCl 0,4 M	55
A.2 Pembuatan NaOH 1 M	55
A.3 Pembuatan larutan stok <i>Congo red</i> 1000 mg/L	55
A.4 Perhitungan rasio Si/P	55
A.5 Pembuatan larutan <i>Congo red</i> 25, 50, 75, 100 dan 150 mg/L	56
A.6 Pembuatan larutan baku <i>Congo red</i> 2, 4, 6, 8 dan 10 mg/L	56
<b>Lampiran B. Diagram Alur Penelitian</b>	57
<b>Lampiran C. Diagram Alir</b>	58
C.1 Aktivasi zeolit	58
C.2 Fosfatasi zeolit	58
C.3 Uji daya adsorpsi	59
C.4 Pembuatan <i>granul ASP</i>	60
C.5 Penentuan waktu kontak adsorpsi GASP terhadap <i>Congo red</i>	60
C.6 Penentuan pH adsorpsi GASP terhadap <i>Congo red</i>	61
C.7 Pengaruh Konsentrasi <i>Congo red</i> terhadap Kapasitas Adsorpsi pada GASP	61
C.8 Pembuatan kurva baku <i>Congo red</i>	62
C.8.1 Penentuan panjang gelombang maksimum <i>Congo red</i>	62
C.8.2 Pembuatan kurva baku <i>Congo red</i>	62
C.8.3 Pengukuran kadar <i>Congo red</i> setelah adsorpsi	63
<b>Lampiran D. Perhitungan Data Hasil Penelitian</b>	64
D.1 Perhitungan Massa <i>Congo red</i> yang Teradsorpsi	64
D.1.1 Perhitungan massa <i>Congo red</i> yang Teradsorpsi pada Uji Daya Adsorpsi dengan Variasi Rasio Si/P	64
D.1.2 Perhitungan massa <i>Congo red</i> yang teradsorpsi pada waktu kontak optimum	66
D.1.3 Perhitungan massa <i>Congo red</i> yang teradsorpsi pada pH optimum	67
D.1.4 Perhitungan massa <i>Congo red</i> yang teradsorpsi pada variasi konsentrasi <i>Congo red</i>	68
<b>Lampiran E. Data Kapasitas Adsorpsi GASP</b>	70
E.1 Data kapasitas adsorpsi GASP	70
E.2 Perhitungan konstanta Langmuir	70
E.3 Perhitungan energi adsorpsi	71

<b>Lampiran F. Kurva Baku Congo red</b>	71
F.1 Panjang gelombang Congo red	71
F.2 Kurva baku Congo red	72
<b>Lampiran G. Uji Statistik</b>	73
G.1 Uji statistik daya adsorpsi variasi rasio Si/P	73
G.1.1 Perhitungan faktor koreksi	73
G.1.2 Perhitungan jumlah kuadrat	73
G.1.3 Perhitungan kuadrat tengah (KT)	74
G.1.4 Perhitungan nilai $F_{hitung}$ dan $F_{tabel}$	74
G.1.5 Uji Beda Nyata Terkecil	74
G.2 Uji statistik pengaruh waktu kontak optimum	75
G.2.1 Perhitungan faktor koreksi	75
G.2.2 Perhitungan jumlah kuadrat	76
G.2.3 Perhitungan kuadrat tengah (KT)	76
G.2.4 Perhitungan nilai $F_{hitung}$ dan $F_{tabel}$	76
G.2.5 Uji Beda Nyata Terkecil	77
G.3 Uji statistik pengaruh pH optimum	78
G.3.1 Perhitungan faktor koreksi	78
G.3.2 Perhitungan jumlah kuadrat	78
G.3.3 Perhitungan kuadrat tengah (KT)	79
G.3.4 Perhitungan nilai $F_{hitung}$ dan $F_{tabel}$	79
G.3.5 Uji Beda Nyata Terkecil	80
G.4 Uji statistik pengaruh variasi konsentrasi Congo red	81
G.4.1 Perhitungan faktor koreksi	81
G.4.2 Perhitungan jumlah kuadrat	81
G.4.3 Perhitungan kuadrat tengah (KT)	81
G.4.4 Perhitungan nilai $F_{hitung}$ dan $F_{tabel}$	82
G.4.5 Uji Beda Nyata Terkecil	82
<b>Lampiran H. Data Karakterisasi</b>	84
H.1 Spektra IR zeolit aktif	84
H.2 Spektra IR ASP rasio Si/P 1/3	84
H.3 Spektra IR ASP rasio Si/P 1/6	85
H.4 Spektra IR ASP rasio Si/P 1/9	85
H.5 Spektra IR ASP rasio Si/P 1/12	86
H.6 Spektra IR GASP	86
H.7 Spektra IR Ca-Alginat	87
H.8 Spektra IR $NH_4H_2PO_4$	87
<b>Lampiran I. Dokumentasi</b>	88

## DAFTAR ISTILAH DAN LAMBANG

<b>Simbol/singkatan</b>	<b>Keterangan</b>
%	Persentase
A	Absorbansi
ASP	<i>Alumino Silico Phosphate</i>
FTIR	<i>Fourier Transform Infrared</i>
g	Gram
g/dm <sup>3</sup>	Gram per desimeter kubik
g/mol	Gram per mol
GASP	<i>Granul Alumino Silico Phosphate</i>
Meq/g	Miliekuivalen per gram
mg/L	Miligram per liter
p.a	<i>Pro analysis</i>
rpm	<i>Revolution per minute</i>





# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Industri tekstil saat ini mengalami perkembangan yang pesat seiring dengan meningkatnya populasi manusia, namun di sisi lain industri ini menghasilkan limbah cair yang mengandung zat warna senyawa organik *non-biodegradable* yang dibuang ke lingkungan perairan. Zat warna tekstil merupakan bahan kimia yang memiliki struktur cincin aromatis dan cincin heteroatom, seperti azo, diazo, benzidin, dan antraquinon yang kompleks dan stabil sehingga menyebabkan komponen ini sulit didegradasi dan bersifat toksik. Zat warna pada umumnya memiliki sifat karsinogenik dan mutagenik yang berbahaya bagi lingkungan [1]. Salah satu jenis zat warna tekstil yang sering digunakan karena harganya yang murah adalah *Congo red*. Zat warna ini merupakan pewarna disazo anionik berbasis benzidin, yaitu pewarna dengan dua kelompok azo. *Congo red* dapat dimetabolisme menjadi benzidin yang karsinogen bagi manusia. Apabila dalam jumlah banyak dan terakumulasi di dalam tubuh jenis zat warna ini dapat menyebabkan gangguan kesehatan seperti ginjal, syaraf, kanker, dan fungsi hati [2].

*Congo red* yang berada dalam limbah cair ini perlu diturunkan tingkat toksisitasnya. Terdapat beberapa metode konvensional untuk menghilangkan ion *Congo red* diantaranya adalah presipitasi kimia, pertukaran ion, filtrasi, dan oksidasi kimia. Namun metode tersebut memiliki kelemahan, diantaranya membutuhkan biaya yang mahal dan operasional yang sulit. Air limbah yang diolah dengan beberapa metode inipun masih mengandung polutan dan dibebankan karena jumlah pereaksi yang ditambahkan [3]. Teknik adsorpsi telah berhasil menghilangkan senyawa organik dari perairan dengan kelebihan efisiensi perawatan tinggi, kesederhanaan desain, ketersediaan, kemudahan operasi, dan juga hemat biaya. Oleh sebab itu dipilih metode adsorpsi yang efektif yaitu dengan menggunakan suatu adsorben yang tepat sebagai faktor penentunya, seperti penggunaan adsorben zeolit [4].

Zeolit adalah mineral yang mempunyai struktur kristal aluminosilikat yang membentuk rangka tiga dimensi dari hubungan antara gugus  $AlO_4^-$  dan  $SiO_4$  oleh atom oksigen. Zeolit memiliki

struktur kristal berpori dan memiliki luas permukaan yang besar. Zeolit banyak dimanfaatkan dalam berbagai kegiatan industri selain sebagai adsorben, seperti bahan pembuatan detergent, penukar ion, katalisator, industri perternakan dan industri pertanian [5]. Kemampuan adsorpsi zeolit juga melibatkan gaya elektrostatis (adsorpsi kimia) yang dapat mengikat ion molekul positif dan negatif dengan muatan yang terdapat pada pori-pori zeolit [6].

Zeolit alam memiliki pori-pori lebih dari 30% volumenya. Namun kemampuan zeolit alam menjadi kurang optimal apabila tanpa adanya aktivasi. Sehingga untuk meningkatkan kemampuan zeolit alam perlu dilakukan aktivasi menggunakan asam kuat [7]. Menurut Hilyati dan Widhastono (1991) kemampuan zeolit alam dapat ditingkatkan sampai 5-7% lebih tinggi dengan adanya aktivasi [8]. Kemampuan ini akan terus meningkat apabila dilakukan modifikasi zeolit, zeolit dapat dimodifikasi dengan fosfatisasi menggunakan amonium dihidrogen fosfat ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ). Saat fosfatisasi atom P akan bermuatan positif karena terjadinya *isomorphous replacement* pada atom Si dalam kristal zeolit. Adanya pertukaran ion positif pada struktur  $\text{PO}_4^-$  dengan gugus  $\text{SiO}_4$  yang bermuatan netral atau dengan gugus  $\text{AlO}_4^-$  yang bermuatan negatif menyebabkan tumbuh situs positif yang lebih banyak, sehingga dengan adanya peningkatan situs positif maka akan berbanding lurus dengan daya adsorpsi pada *Congo red* yang merupakan anionik [9]. Menurut Hayati (2002) kondisi optimum saat melakukan fosfatisasi menggunakan amonium dihidrogen fosfat ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ) adalah pada temperatur  $235^\circ\text{C}$  selama 5 jam, karena pada kondisi tersebut  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  akan terdekomposisi membebaskan amonia sehingga tidak terbentuk ion  $\text{NH}_4^+$  yang dapat mengganggu proses fosfatisasi [10].

Menurut Kragović, dkk (2018) ukuran adsorben yang kecil antara  $-0,8+0,6$  mm justru menunjukkan penurunan kapasitas adsorpsi meskipun sebelumnya sudah melalui proses fosfatisasi [11]. Oleh sebab itu dengan meningkatkan ukuran partikel melalui penambahan alginat, zeolit terimobilisasi mengalami peningkatan kapasitas adsorpsi dari 134 mg/g menjadi 136 mg/g terhadap limbah anion. Alginat adalah biopolimer alam hasil ekstraksi ganggang coklat tersusun atas rantai lurus asam  $\alpha$ -L-guluronat (G) dan asam  $\beta$ -D-mannuronat (M). Penambahan alginat berfungsi sebagai

pembentuk gel dan pengental sehingga meningkatkan ukuran partikel. Adanya kation divalen seperti  $\text{Ca}^{2+}$  mengakibatkan terbentuknya hidrogel pada alginat. Natirum alginat sangat mudah digunakan, tidak membutuhkan peralatan khusus serta sangat ekonomis [12]. Menurut Singh, dkk(2012) dengan adanya alginat dapat mengadsorpsi secara efektif adanya logam berat dan limbah hasil efluen kontaminasi industri seperti limbah tekstil [13]. Zeolit terimobilisasi alginat dimodifikasi dalam bentuk granul (butiran) karena memiliki sifat biodegradabilitas dan hidrofilisitas serta terdiri dari gugus-gugus aktif sehingga dapat memudahkan sekaligus meningkatkan kemampuan adsorpsi. Oleh sebab itu dalam penelitian ini dilakukan uji pengaruh waktu kontak, pH, dan konsentrasi terhadap adsorpsi *Congo red* dengan Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP).

## 1.2 Rumusan Masalah

1. Bagaimana karakteristik adsorben GASP berdasarkan spektra FTIR?
2. Bagaimana pengaruh fosfatasi zeolit terhadap daya adsorpsi *Congo red* pada GASP?
3. Bagaimana kondisi optimum adsorpsi *Congo red* pada GASP?
4. Berapa kapasitas adsorpsi GASP terhadap *Congo red*?

## 1.3 Batasan Masalah

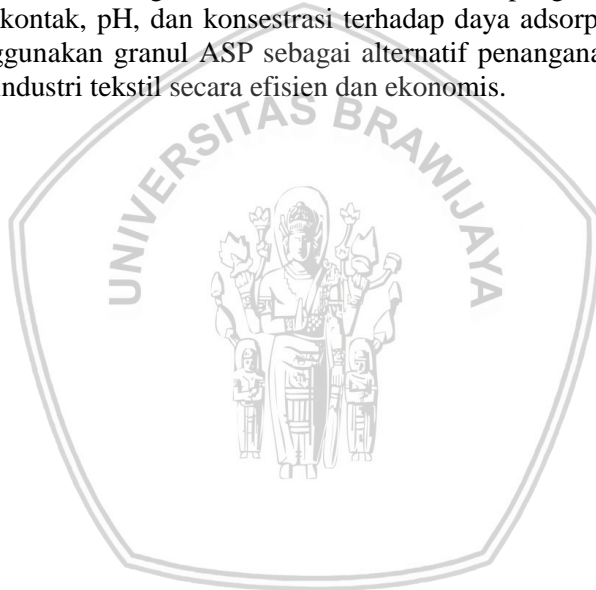
1. Limbah buatan yang digunakan adalah zat warna *Congo red*.
2. Zeolit alam yang digunakan adalah zeolit Blitar dengan ukuran 150-200 *mesh*.
3. Adsorpsi dilakukan pada temperatur ruang ( $25 \pm 2^\circ\text{C}$ ).
4. Proses fosfatasi dilakukan pada temperatur  $235^\circ\text{C}$  selama 5 jam.
5. Sumber fosfat yang digunakan adalah amonium dihidrogen fosfat ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ).
6. Kondisi optimum yang dikaji berdasarkan pengaruh pH dan waktu kontak.

## 1.4 Tujuan Penelitian

1. Melakukan karakterisasi adsorben GASP berdasarkan spektra FTIR.
2. Mengetahui pengaruh fosfatasi zeolit terhadap daya adsorpsi *Congo red* pada GASP.
3. Mengetahui kondisi optimum waktu kontak dan pH terhadap daya adsorpsi pada GASP.
4. Mengetahui kapasitas adsorpsi GASP terhadap *Congo red*

## 1.5 Manfaat Penelitian

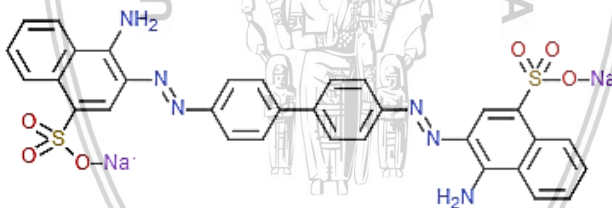
Hasil penelitian ini diharapkan dapat memberikan informasi akan karakteritik granul ASP serta informasi pengaruh fosfatasi, waktu kontak, pH, dan konsentrasi terhadap daya adsorpsi *Congo red* menggunakan granul ASP sebagai alternatif penanganan masalah limbah industri tekstil secara efisien dan ekonomis.



## BAB II TINJAUAN PUSTAKA

### 2.1 Kimiawi Congo Red

*Congo red* (CR) memiliki nama IUPAC natrium benzendiazo-bis-1-naftilamin-4-sulfonat yang mempunyai rumus kimia  $C_{32}H_{22}N_6Na_2O_6S_2$ . Berbentuk padatan serbuk merah kecoklatan, di dalam etanol akan bewarna orange dan di dalam air akan berwarna merah kekuningan. Senyawa ini memiliki berat molekul 696,67 g/mol dan titik lebur  $>360^\circ\text{C}$  [14]. *Congo red* dibuat dengan menggabungkan benzin diazot dengan dua molekul asam naftionat. Pewarna anionik ini dapat dimetabolisme menjadi benzin diazot yang dikenal sangat karsinogen bagi manusia [2]. Warna merah menyala pada *Congo red* dapat diamati dengan menggunakan Spektrofotometer. Spektra pada *Congo red* menunjukkan karakteristik pada puncak sekitar 498 nm. Larutan *Congo red* dapat digunakan sebagai pengujian asam hidroklorat dalam lambung, diagnosis amiloidosis, sebagai indikator pH 3,0-5,2 dan juga sebagai pewarnaan histologis untuk amiloid seperti **Gambar 2.1** [15].

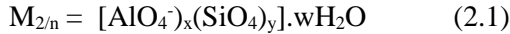


**Gambar 2.1** Struktur molekul Congo red [15]

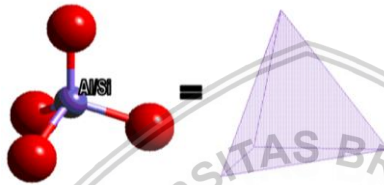
### 2.2 Kimiawi Zeolit

Zeolit adalah kristal, aluminosilikat terhidrasi. Zeolit yang merupakan mineral unik mempunyai struktur sangkar kristal aluminosilikat yang membentuk rangka tiga dimensi dari hubungan oleh atom oksigen dengan gugus alumina  $\text{AlO}_4^-$  dan gugus silika  $\text{SiO}_4$  yang teratur dan berperiodik yang disebut material poros [5]. Zeolit mengandung kation alkali atau alkali tanah yang dapat digantikan dengan kation lain tanpa merusak struktur zeolit, selain

itu zeolit juga dapat mengadsorpsi air secara *reversible*. Sedangkan rumus umum zeolit yaitu [16],

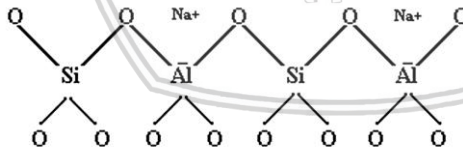


Dengan M, n, (x, y) dan w secara berturut-turut adalah kation yang dapat dipertukarkan, valensi kation M, jumlah tetrahedral dalam unit sel dan jumlah molekul air dalam unit sel (rasio y/x adalah 1-5) [16].



**Gambar 2.2** Model tetrahedral Al/Si [16]

Kerangka utama zeolit adalah tertrahedron yang pusatnya adalah silikon atau aluminium, dengan empat atom oksigen yang membentuk simpul. Substitusi dari  $Si^{4+}$  oleh  $Al^{3+}$  akan menyediakan muatan negatif pada kerangka zeolit sehingga perlu distabilkan oleh kation monovalent dan atau divalent yang terletak pada permukaan kerangka [17].



**Gambar 2.3** Struktur kerangka zeolit alam [17]

### 2.3 Sumber Zeolit Alam

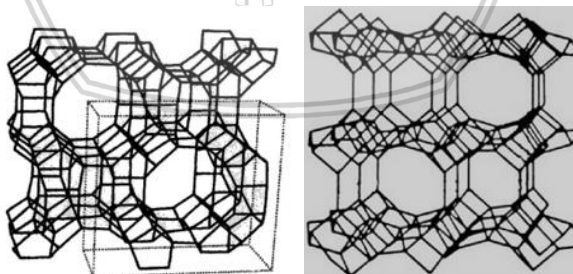
Zeolit alam banyak dijumpai pada batuan sedimen terutama sedimen periklastik berbutir halus. Zeolit alam dipilih karena kemampuannya yang baik serta memiliki potensi yang tinggi sebagai penukar ion, adsorben dan penyaring molekul. Namun

karena kemurniaannya yang rendah membuat kurang optimalnya pemanfaatan zeolit alam dibanding dengan zeolit konvensional. Terdapat 9 jenis zeolit batuan sedimen yang umum, seperti pada **Tabel 2.1** [18].

**Tabel 2.1** Jenis-jenis zeolit pada batuan sedimen [18]

Nama Mineral Zeolit	Rumus Kimia Unit Sel
Analsim	$\text{Na}_{16}(\text{Al}_{16}\text{Si}_{32}\text{O}_{96}) \cdot 16\text{H}_2\text{O}$
Kabasit	$(\text{Na}_2, \text{Ca})_6(\text{Al}_{12}\text{Si}_{24}\text{O}_{72}) \cdot 40\text{H}_2\text{O}$
Klinoptilolit	$(\text{Na}_4\text{K}_4)(\text{Al}_8\text{Si}_{40}\text{O}_{96}) \cdot 24\text{H}_2\text{O}$
Erionit	$(\text{Na}, \text{Ca}_5, \text{K})(\text{Al}_9\text{Si}_{27}\text{O}_{72}) \cdot 27\text{H}_2\text{O}$
Ferrierit	$(\text{Na}_2\text{Mg}_2)(\text{Al}_6\text{Si}_{30}\text{O}_{72}) \cdot 18\text{H}_2\text{O}$
Heulandit	$\text{Ca}_4(\text{Al}_8\text{Si}_{28}\text{O}_{72}) \cdot 24\text{H}_2\text{O}$
Laumonit	$\text{Ca}_4(\text{Al}_8\text{Si}_{16}\text{O}_{48}) \cdot 16\text{H}_2\text{O}$
Mordenit	$\text{Na}_8(\text{Al}_8\text{Si}_{40}\text{O}_{96}) \cdot 24\text{H}_2\text{O}$
Filipsit	$(\text{Na}_2\text{K})_{10}(\text{Al}_{10}\text{Si}_{22}\text{O}_{64}) \cdot 20\text{H}_2\text{O}$

Di Indonesia sendiri, zeolit yang sering ditemukan adalah jenis klinoptilolit  $(\text{Na}_4\text{K}_4)(\text{Al}_8\text{Si}_{40}\text{O}_{96}) \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  dan mordenit  $[\text{Na}_8(\text{Al}_8\text{Si}_{40}\text{O}_{96}) \cdot 24\text{H}_2\text{O}]$ . Zeolit klinoptilolit berstruktur kristal monoklinik yang stabil terhadap suhu tinggi. Kepadatan spesifik klinoptilolit berada pada kisaran 2,02-2,25 g/cm<sup>3</sup>, dan kekerasannya pada skala Mohs berkisar antara 3,5-5,5 serta kapasitas tukar ion sebesar 2,54 Meq/g. Sedangkan mordenit berstruktur kristal ortorombik dengan kapasitas tukar ion sebesar 2,29 Meq/g [18].



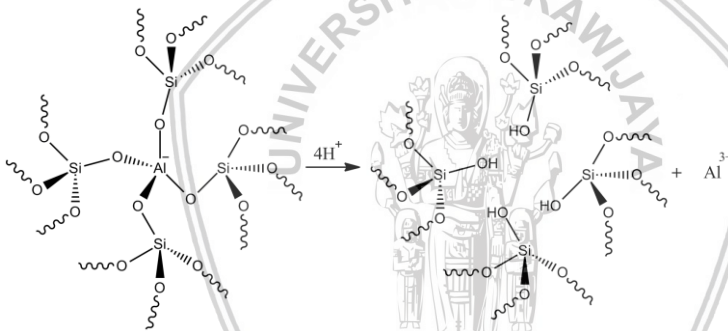
**Gambar 1.4** Sistem saluran mordenit (kiri) dan klinoptilolit (kanan) [19], [20]



Saluran utama pada modernit terdiri dari 12 cincin oksigen berdiameter 6,7-7,0 Å yang terhubung dengan sistem 5 dan 6 cincin seperti pada **Gambar 2.4** (kiri) [19]. Demikian dengan klinoptilolit yang saluran utaman dibentuk dari 8 dan 10 cincin oksigen seperti pada **Gambar 2.4** (kanan) [20].

## 2.4 Aktivasi Zeolit

Zeolit alam memiliki pori-pori lebih dari 30% volumnya. Namun kemampuan zeolit alam menjadi kurang optimal apabila tanpa adanya aktivasi. Molekul dapat diserap dan dilepaskan oleh zeolit berdasarkan bentuk, ukuran dan polaritasnya. Tujuan dari aktivasi zeolit agar penutup rongga oleh pengotor dapat dihilangkan sehingga kapasitas adsorpsi dan kemampuan penukar ion dapat meningkat. Dua cara untuk mengaktifkan zeolit adalah dengan pemanasan dan aktivasi kimia [21].

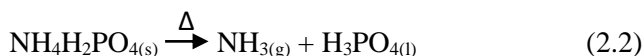


**Gambar 2.5** Reaksi aktivasi zeolit secara kimia [21]

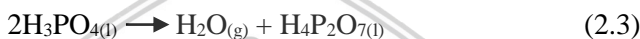
Aktivasi dengan pemanasan pada 150 - 350°C dilakukan untuk menghilangkan air yang terikat secara fisika serta menguraikan senyawa-senyawa organik yang terperangkap dalam rongga atau pori zeolit. Sedangkan aktivasi secara kimia bertujuan untuk melarutkan pengotor yang menutupi permukaan zeolit dan gugus fungsi yang ada pada zeolit. Pengotor yang bersifat asam akan dilarutkan oleh larutan pencuci asam, dan pengotor yang bersifat basa akan larut dengan larutan pencuci basa. Reaksi aktivasi zeolit secara kimia seperti pada **Gambar 2.5** [21].

## 2.5 Sifat Amonium Dihidrogen Fosfat

Amonium dihidrogen fosfat merupakan padatan putih yang memiliki berat molekul 115,03 g/mol. Senyawa ini memiliki titik leleh 190°C dan berat jenisnya 1,803 g/cm<sup>3</sup>. Kelarutan dalam air sebesar 22,7 g/100 mL dan pada suhu 100°C sebesar 173,2 g/100 mL [22]. Amonia dapat dilepaskan oleh Amonium dihidrogenfosfat pada 235°C seperti reaksi pada persamaan 2.2 [23]:



Ketika temperatur melebihi 250°C, asam pirofosfat akan terbentuk dari asam fosfat sementara uap air dilepaskan seperti pada reaksi persamaan 2.3 [18]



Apabila terjadi pemanasan mencapai 600°C maka asam pirofosfat akan menghasilkan asam metafosfat ( $\text{HPO}_4$ )<sub>x</sub> dan uap air akan dilepaskan seperti pada reaksi persamaan 2.4 [18].



## 2.6 Fosfatasi Zeolit Aktif

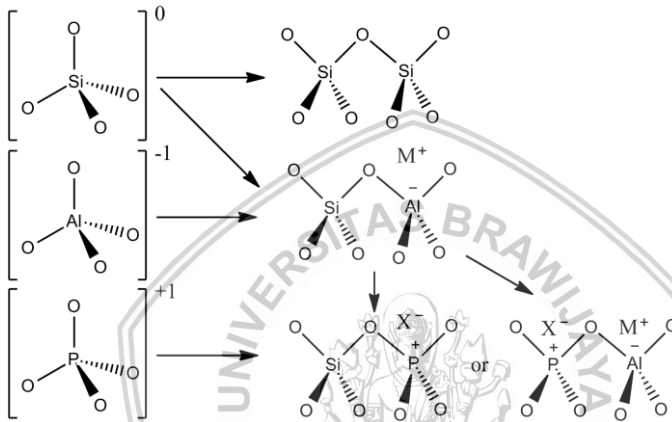
Zeolit dimodifikasi melalui proses fosfatasi menggunakan amonium dihidrogen fosfat ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ) sehingga membentuk alumino-siliko fosfat (ASP). Saat proses fosfatasi atom P akan bermuatan positif karena terjadinya *isomorphous replacement* pada atom Si dalam kristal zeolit dengan atom P. *Isomorphous replacement* atau substitusi isomorfi adalah proses substitusi senyawa yang berbeda tanpa mengganggu struktur utama. Adanya pertukaran ion positif pada struktur  $\text{PO}_4^+$  dengan gugus  $\text{SiO}_4$  yang bermuatan netral atau dengan gugus  $\text{AlO}_4^-$  yang bermuatan negatif menyebabkan tumbuh situs positif yang lebih banyak, sehingga dengan adanya peningkatan situs positif maka akan berbanding lurus dengan daya adsorpsi pada *Congo red* yang merupakan anionik [9].

Fungsi ASP adalah penukar kation (oleh Al) serta penukar anion (oleh P). Secara umum rumus ASP adalah [24]:



Dengan a, b dan c berturut-turut adalah mol ekuivalen dari  $\text{AlO}_4^-$ ,  $\text{PO}_4^+$  dan  $\text{SiO}_4$ . Apabila nilai  $a < b$  maka zeolit berkerangka dengan muatan positif dan apabila  $a > b$  maka zeolit berkerangka dengan muatan negatif [24].

Pertukaran dengan ion  $\text{PO}_4^+$  yang bermuatan positif tanpa mengganggu struktur utama zeolit seperti pada **Gambar 2.6** [24].



**Gambar 2.6** Mekanisme substitusi isomorfik [24]

## 2.7 Proses Adsorpsi pada Zeolit

Adsorpsi adalah mekanisme terakumulasinya fluida (zat terlarut cair dan gas) yang dikontakkan dengan permukaan adsorben sehingga terbentuk lapisan molekul atau atom (adsorbat). Ketidakseimbangan antara gaya kohesi (gaya tarik menarik antara molekul yang berbeda jenis) yang cenderung lebih besar dibanding dengan gaya adhesi (gaya tarik menarik antara molekul sejenis) menyebabkan adsorben dapat menarik molekul apabila terjadi kontak dengan permukaan adsorben. Adsorpsi digolongkan menjadi adsorpsi fisika dan adsorpsi kimia. Adsorpsi fisika terjadi karena adanya gaya lemah dari pengaruh ikatan van der Waals antara adsorben dan adsorbat sehingga adsorbat tidak terikat kuat pada adsorben. Sedangkan adsorpsi kimia terjadi karena gaya elektrostatis

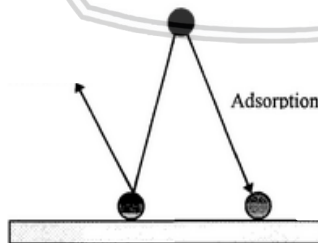
kuat akibat ikatan kovalen ataupun ionik antara adsorbat dan permukaan adsorben [25].

Faktor-faktor yang mempengaruhi proses adsorpsi yaitu [25, 26]:

1. Ukuran molekul adsorbat  
Molekul dengan ukuran sama atau lebih kecil dari diameter adsorben akan lebih mudah teradsorpsi.
2. Pengadukan  
Proses adsorpsi bergantung pada difusi pori dan difusi film, yang dipengaruhi oleh proses pengadukan pada sistem. Semakin cepat diaduk maka difusi adsorbatpun akan semakin cepat adsorben.
3. pH larutan  
Tingkat ionisasi larutan dipengaruhi oleh pH adsorbat. Pada pH rendah, ion  $H^+$  akan berkompetisi dengan zat yang ingin diserap, sehingga menyebabkan efisiensi penjerapan akan menurun. Biasanya proses adsorpsi terjadi pada pH tinggi/pH basa.
4. Kepolaran zat  
Kapasitas adsorpsi akan berbanding lurus terhadap kepolaran, semakin tinggi kepolaran semakin tinggi kapasitas adsorpsi pada kondisi diameter yang sama. Molekul yang lebih polar akan mudah menggantikan molekul yang kurang polar. Selain itu pada waktu kontak yang sama molekul polar akan lebih dahulu teradsorpsi.
5. Kemurnian adsorben  
Sebagai zat yang digunakan dalam proses adsorpsi, adsorben yang lebih murni memiliki kemampuan adsorpsi yang lebih baik.
6. Luas permukaan dan pori adsorben  
Bertambahnya luas permukaan dan volume pori adsorben maka jumlah molekul adsorbat yang teradsorpsi semakin meningkat.
7. Tekanan adsorbat  
Terjadi pengaruh yang berbeda pada proses adsorpsi kimia dan fisika. Pada adsorpsi fisika kenaikan tekanan adsorbat dapat meningkatkan jumlah yang teradsorpsi. Sedangkan

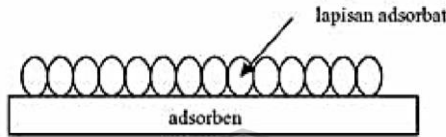
- pada adsorpsi kimia justru akan menurunkan jumlah yang teradsorpsi.
8. Waktu kontak  
Semakin lama waktu kontak dalam proses adsorpsi maka memungkinkan proses difusi dan penempelan adsorbat berlangsung lebih baik. Konsentrasi adsorbat akan menurun dan pada titik tertentu akan mencapai kesetimbangan hingga konstan.
  9. Konsentrasi  
Semakin tinggi konsentrasi adsorbat maka adsorbat yang teradsorpsi akan semakin banyak, karena frekuensi tumbukan antar partikel semakin besar.
  10. Temperatur  
Proses adsorpsi akan meningkat dengan kenaikan temperatur dan akan mengalami penurunan ketika temperatur turun.

Bagian terpenting dalam adsorpsi adalah situs dari adsorben pada permukaannya. Jumlah situs berbanding lurus dengan luas permukaan adsorben yaitu semakin berkurang apabila permukaan yang tertutup semakin bertambah. Kapasitas adsorpsi *Granul Alumino Silico Phosphate* dapat ditentukan dengan menggunakan persamaan Langmuir. Menurut Langmuir terjadinya adsorpsi di permukaan adsorben berdasarkan sudut pandang kinetik. Kontak pada molekul di permukaan adsorben terjadi secara terus menerus sampai laju tumbukan mendekati nol sehingga molekul tersebut diakumulasi pada permukaan adsorben (kesetimbangan) dengan mekanisme seperti pada **Gambar 2.7** [27]



**Gambar 2.7** Mekanisme adsorpsi Langmuir pada permukaan adsorben [27]

Langmuir menganggap bahwa padatan mempunyai permukaan yang sama, molekul yang di adsorpsi ditempatkan pada tempat yang spesifik, energi permukaan tidak tergantung pada ditempati atau tidaknya permukaan, dan molekul yang diadsorpsi hanya membentuk satu lapis (*monolayer*). Model ini mendefinisikan bahwa kapasitas adsorpsi maksimum terjadi akibat adanya lapisan tunggal (*monolayer*) adsorbat di permukaan adsorben seperti **Gambar 2.8** [28]



**Gambar 2.8** Lapisan tunggal (*monolayer*) pada adsorben [28]

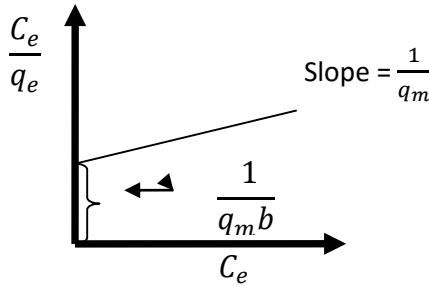
Pada keadaan setimbang, maka laju adsorpsi dan desorpsi molekul-molekul pada permukaan adalah sama sesuai dengan persamaan 2.6 yaitu [28]

$$q_e = \frac{bq_m C_e}{1 + bC_e} \quad (2.6)$$

Persamaan 2.6 dapat diturunkan menjadi persamaan 2.7 yaitu [28]

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_m b} + \frac{1}{q_m} C_e \quad (2.7)$$

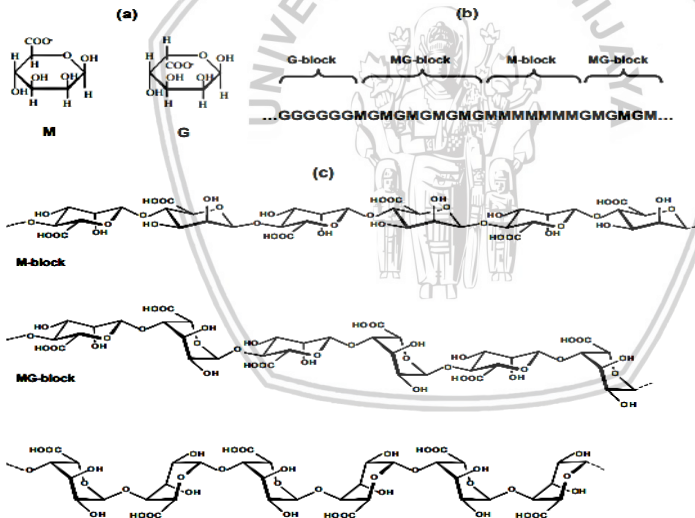
Kurva dapat dibuat sesuai persamaan 2.7 yaitu  $C_e/q$  (sumbu y) terhadap  $C_e$  (sumbu x) diperoleh persamaan linear dengan intersep  $(1/q_m b)$  dan kemiringan  $(1/q_m)$  seperti **Gambar 2.9**. Dengan  $C_e$  adalah konsentrasi ion adsorbat dalam larutan setelah diadsorpsi,  $q$  adalah massa ion adsorbat yang diserap per gram adsorben,  $b$  adalah konstanta Langmuir / parameter afinitas yang berhubungan dengan energi adsorpsi (L/mg) dan  $q_m$  adalah kapasitas adsorpsi maksimum (mg/g) [28].



Gambar 2.9 Grafik Hukum Langmuir

### 2.8 Pembuatan *Granul Alumino Silico Phosphate*(GASP)

Alginat adalah biopolimer alam hasil ekstraksi ganggang coklat tersusun atas rantai lurus asam  $\alpha$ -L-gulonat (G) dan asam  $\beta$ -D-mannuronat (M). Kelarutan alginat dan kemampuannya mengikat air bergantung pada jumlah ion karboksilat, berat molekul dan pH.



Gambar 2.10 Struktur kimia alginat. (a) Ilustrasi rumus Haworth dari dua monomer M =  $\beta$ -D-mannuronic acid dan G =  $\alpha$ -L-gulonat acid. (b) Blok komposisi dalam alginat. (c) Bentuk rantai alginat ( $^4C_1$  untuk M dan  $^1C_4$  untuk G) [29]



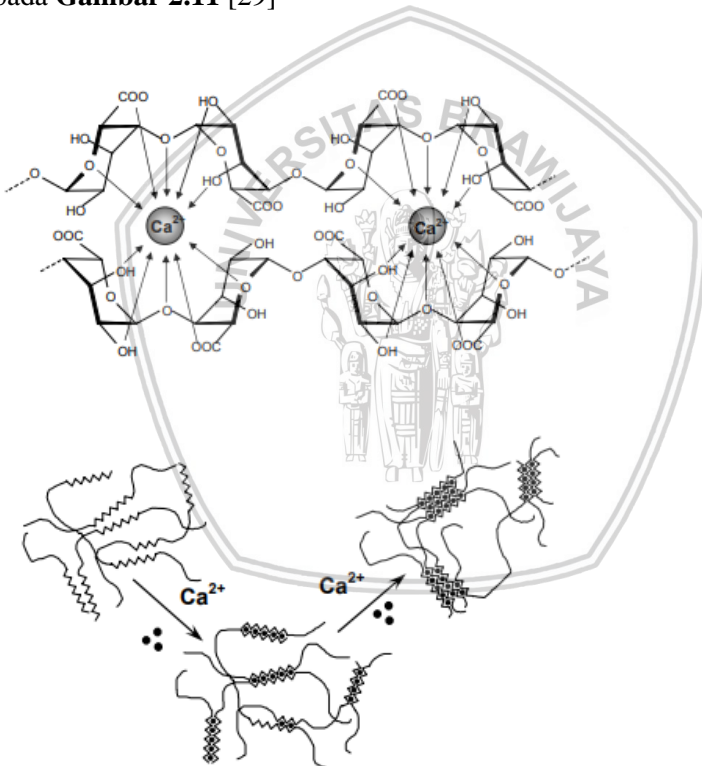
Alginat memiliki sifat utama yaitu mampu untuk larut dalam air serta meningkatkan viskositas larutan, mampu membentuk gel dan mampu membentuk film (natrium atau kalsium alginat) dan serat. Faktor-faktor yang mempengaruhi sifat tersebut adalah suhu, konsentrasi dan ukuran polimer. Faktor kimia yang berpengaruh adalah pengikat logam serta garam monovalen dan multivalen. Struktur alginat seperti **Gambar 2.10** [29].

Natrium alginat larut dalam air membentuk koloid kental dan tidak larut dalam medium dengan pH kurang dari 3, etanol dan pelarut organik lainnya. Larutan alginat stabil pada pH 4 sampai 10. Viskositas akan menurun pada pH larutan di atas 10. Rumus molekul natrium alginat adalah  $(C_6H_7O_6Na)_m$  dan berat molekul 198,11. Titik lebur lebih dari 300°C dan pH = 7,2 untuk 1% air [30]. Adanya kation divalen seperti  $Ca^{2+}$  mengakibatkan terbentuknya hidrogel pada alginat. Penambahan alginat berfungsi sebagai pembentuk gel dan pengental. Natrium alginat berinteraksi dengan kation divalen membentuk gel yang di dalam air tidak larut meskipun adalah garam yang mudah larut dalam air. Natrium alginat sangat mudah digunakan, tidak membutuhkan peralatan khusus serta sangat ekonomis [12].

Granul adalah mikrokapsul berbentuk sferis atau butiran tidak beraturan yang dibuat sebagai substrat padat. Dalam proses adsorpsi, zeolit terimobilisasi alginat dibuat dengan tujuan untuk meningkatkan stabilitas, kekuatan mekanik, regenerasi, kemudahan penanganan dan peningkatan kapasitas adsorpsi. Zeolit terimobilisasi alginat memiliki sifat biodegradabilitas dan hidrofilisitas serta terdiri dari gugus-gugus aktif yang memudahkan dalam proses adsorpsi [31].

Pembuatan granul dengan alginat ini menerapkan metode gelasi ion, prinsipnya adalah proses *crosslinked* (sambung silang) antara polimer dengan kation multivalen. Metode ini terdiri dari dua macam, yaitu gelasi eksternal dan gelasi internal. Perbedaannya terdapat pada sumber kation divalen. Pada teknik gelasi internal,

sumber kation divalen didispersikan bersama dengan natrium alginat. Sedangkan teknik gelas eksternal, sumber kation divalen tidak didispersikan bersama dengan natrium alginat. Sambung silang dilakukan dengan cara mendispersikan natrium alginat dalam medium yang mengandung ion divalen seperti kalsium, kalsium akan langsung bereaksi dengan gugus karboksilat dari residu asam guluronat. Ion kalsium akan menggantikan ion natrium pada polimer sehingga terbentuk jaringan gel tiga dimensi dan digambarkan sebagai model “egg-box”. Setiap ion kalsium dapat berikatan dengan dua rantai polimer, proses ini disebut *crosslinked* (sambung silang) seperti pada **Gambar 2.11** [29]

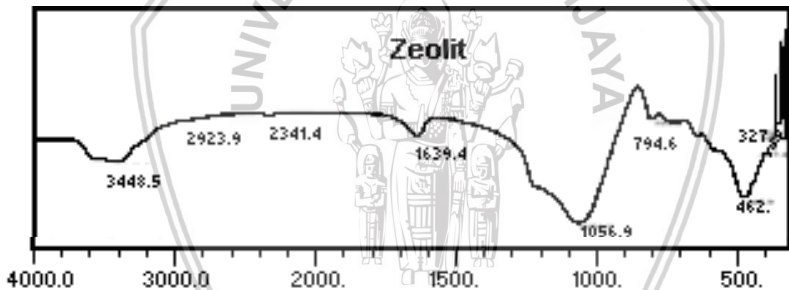


**Gambar 2.11** Ikatan ion divalen dengan alginat – model “egg-box” [29]

## 2.9 Karakterisasi Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP) Menggunakan FT-IR

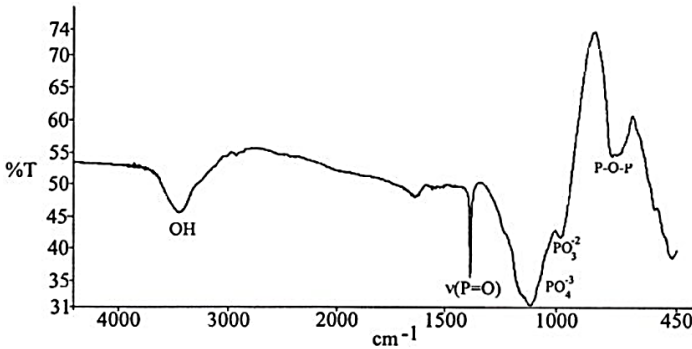
FT-IR merupakan suatu teknik analisis spektroskopi yang digunakan untuk mengidentifikasi suatu gugus fungsi melalui vibrasi yang ditimbulkan oleh gugus fungsi tersebut. Prinsip kerjanya yaitu adanya interaksi ketika radiasi sinar infra merah ditembakkan menghasilkan energi yang berinteraksi dengan molekul senyawa sehingga menyebabkan molekul tersebut mengalami vibrasi. Vibrasi ini berbeda-beda tergantung kepada gugus fungsi dan kekuatan ikatannya, sehingga menjadi ciri khas antara molekul satu dengan molekul lainnya [32].

Spektra zeolit pada **Gambar 2.12** memiliki serapan bilangan gelombang  $3448,5 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya serapan  $\text{-OH}$  yang terhidrasi pada zeolit. Pada bilangan gelombang  $1056,9 \text{ cm}^{-1}$  dan  $794,6 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya regangan asimetris dan simetri dari  $\text{O-Si-O}$  dan  $\text{O-Al-O}$ , sedangkan pada bilangan gelombang  $462,9 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya interaksi  $\text{Si-O-Si}$  dan  $\text{Al-O-Al}$  [33].



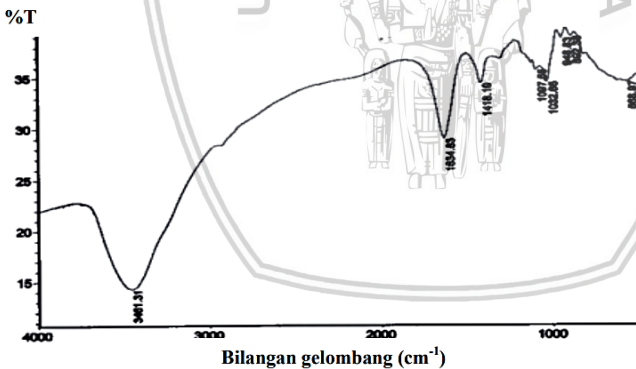
**Gambar 2.12** Spektra FT-IR zeolit [33]

Spektra zeolit  $\text{AlPO}_4$  pada **Gambar 2.13** memiliki serapan bilangan gelombang  $3678 \text{ cm}^{-1}$  dan  $3743 \text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan gugus fungsi  $\text{P-OH}$  dan  $\text{Al-OH}$ . Serapan  $\text{P=O}$  terjadi pada bilangan gelombang  $1450\text{-}1400 \text{ cm}^{-1}$ . Serapan melebar pada  $3000\text{-}4000 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur  $\text{O-H}$  pada  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{N-H}$  pada  $\text{NH}_3$ . Serapan melebar daerah  $1100 \text{ cm}^{-1}$  dan  $550\text{-}600 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan regangan asimetris tetrahedral  $\text{PO}_4$  [33].



Gambar 2.13 Spektra FT-IR AlPO<sub>4</sub> zeolit [33]

Pada pengukuran spektrofotometri inframerah natirum alginat pada **Gambar 2.14** menunjukkan bahwa natrium alginat murni memperlihatkan gugus hidroksil (-OH) pada bilangan gelombang 3461,31 cm<sup>-1</sup>, 1418,19 cm<sup>-1</sup>, gugus alkil (-CH-) pada bilangan 1097,55 cm<sup>-1</sup>, 948,83 cm<sup>-1</sup>, 893,38 cm<sup>-1</sup>, gugus karbonil (C=O) pada bilangan 1634,83 cm<sup>-1</sup>, 1032,65 cm<sup>-1</sup>, dan gugus alkena (C=C) 568,77 cm<sup>-1</sup> [34]

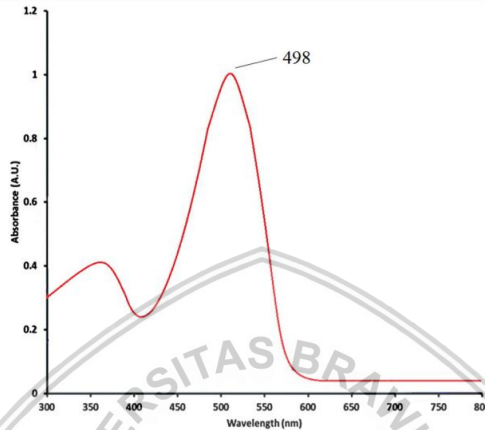


Gambar 2.14 Spektra FT-IR natrium alginat [34]

## 2.10 Analisa Kuantitatif Congo Red Menggunakan Spektrofotometri UV

Konsentrasi *congo red* sisa dalam larutan dapat ditentukan dengan metode spektrofotometri sinar tampak (UV). Analisa

kuantitatif secara spektrofotometri dilakukan dengan menggunakan kurva baku hubungan absorbansi dengan konsentrasi larutan standar *congo red*. Spektra pada *Congo red* menunjukkan karakteristik pada puncak sekitar 498 nm seperti pada **Gambar 2.15** [35].

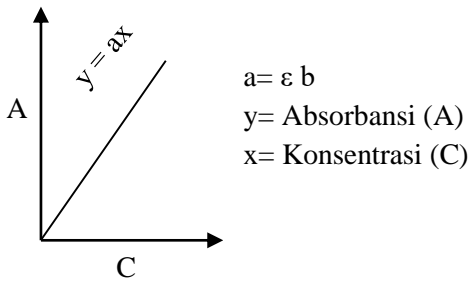


**Gambar 2.15** Spektra UV *congo red* [35]

Berdasarkan hukum Lambert-Beer, absorbansi berbanding lurus dengan konsentrasi zat yang menyerap radiasi dan panjang radiasi dalam medium. Sesuai dengan persamaan 2.8 [36]:

$$A = \epsilon b c \quad (2.8)$$

Dimana,  $A$  adalah absorbansi,  $\epsilon$  adalah absorpsivitas molar ( $L \cdot mol^{-1} \cdot cm^{-1}$ ),  $b$  adalah tebal medium yang terserap (cm) dan  $c$  adalah konsentrasi larutan ( $mol \cdot L^{-1}$ ) [36]. Grafik hubungan antara absorbansi ( $A$ ) dengan konsentrasi ( $c$ ) akan diperoleh garis lurus melalui titik nol, dengan  $\epsilon$  dan  $b$  slope garis. Kurva baku hubungan antara konsentrasi dengan absorbansi dapat digambarkan seperti pada **Gambar 2.16** [37].



**Gambar 2.16** Kurva baku hubungan konsentrasi dengan absorbansi [37]



## BAB III METODE PENELITIAN

### 3.1 Tempat dan Waktu Penelitian

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia Anorganik Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Brawijaya Malang. Penelitian ini dilaksanakan pada bulan Februari hingga Mei 2019.

### 3.2 Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan pada penelitian ini adalah *magnetic stirrer*, spektrofotometer UV-Vis 1601 (Shimadzu), neraca analitik, tanur 6000 (Barnstead Thermolgne), oven (*Memmert*), ayakan 150 *mesh* dan 200 *mesh*, *shaker* (Wise Shake), gelas kimia, pipet ukur, *hot plate*, *Fourier Transformation Infra Red* (FT-IR) 8400S, cawan porselin dan peralatan gelas.

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain zeolit, *Congo red*, kertas saring, HCl 32 %, akuades, amonium dihidrogen fosfat ( $\text{NH}_3\text{H}_2\text{PO}_4$ ) (p.a), magnesium nitrat (p.a), natrium alginat(p.a), NaCl (p.a), kalsium klorida(p.a), NaOH(p.a).

### 3.3 Tahapan Penelitian

Penelitian ini dilakukan melalui beberapa tahapan kegiatan, antara lain:

1. Aktivasi zeolit
2. Fosfatasi zeolit
3. Uji daya adsorpsi
4. Pembuatan Granul ASP
5. Penentuan waktu kontak optimum adsorpsi GASP terhadap *Congo Red*
6. Penentuan pH optimum adsorpsi GASP
7. Penentuan konsentrasi optimum adsorpsi GASP
8. Penentuan kadar *Congo red*
9. Karakterisasi granul ASP menggunakan *Fourier Transformation Infra Red* (FT-IR)
10. *Analisis data*



## 3.4 Prosedur Penelitian

### 3.4.1 Aktivasi zeolit

Zeolit alam yang masih kasar dihaluskan dan diayak untuk memperoleh partikel zeolit ukuran 150-200 *mesh*. Sebelum dilakukan aktivasi tiap 20 g zeolit dicuci dengan akuades 250 mL dan diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 1 jam. Lalu zeolit disaring dan dikeringkan pada 105 °C. Kemudian zeolit yang sudah kering dicampur dengan HCl 0,4 M dengan rasio 1 g zeolit / 10 mL HCl selama 4 jam diaduk dengan *magnetic stirrer*. Zeolit hasil aktivasi dibilas dengan akuades hingga pH filtrat sama dengan pH akuades lalu dikeringkan pada 105 °C.

### 3.4.2 Fosfatasi zeolit

Sebanyak 1 g campuran zeolit aktif dengan  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  rasio Si/P 1/3; 1/6; 1/9; 1/12 di panaskan didalam tanur pada temperatur 235°C selama 5 jam. Campuran yang telah dipanaskan didinginkan pada suhu ruang, lalu dicuci dengan akuades sampai bebas ion fosfat. Padatan bebas ion fosfat diuji kualitatif dengan menambahkan larutan  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$  (terbentuk endapan putih). Padatan yang telah bebas ion fosfat dikeringkan pada 105°C sehingga diperoleh serbuk *Alumino Silico Phosphate* (ASP).

### 3.4.3 Uji daya adsorpsi

Padatan ASP dari empat variasi rasio Si/P di uji adsorpsi terhadap *Congo red*. Sebanyak 0,1 g ASP dari masing-masing variasi dimasukan kedalam masing-masing erlenmeyer dan ditambahkan dengan 25 ml larutan zat warna *Congo red* 50 mg/L dengan pH 3 [38]. Sampel diaduk selama 30 menit dengan kecepatan 150 rpm dan kemudian disentrifugasi dengan kecepatan 3000 rpm selama 30 menit. Filtrat kemudian dikondisikan menjadi pH 7 dengan penambahan NaOH 0,01M. Konsentrasi filtrat dianalisa dengan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 498 nm. Proses dilakukan triplo. Adsorben dengan daya adsorpsi paling besar digunakan untuk penelitian selanjutnya.

### 3.4.5 Pembuatan granul ASP

Natrium alginat 2 g dilarutkan dalam 100 mL akuades bebas ion, kemudian dimasukkan dalam gelas kimia 500 mL. Selanjutnya

diaduk menggunakan *magnetic stirrer* sambil dipanaskan dengan temperatur 40°C agar terbentuk fasa gel. Kemudian ASP dari variasi Si/P terpilih sebanyak 6 g didispersikan pada larutan natrium alginat dan dihomogenkan. Campuran yang didapat kemudian dimasukkan dalam jarum *syringe* dan diteteskan pada larutan CaCl 3% dan didiamkan selama 1 jam. Granul yang telah terbentuk kemudian dicuci dengan NaCl 0,85% dan akuades serta dikeringkan dengan temperature 70°C selama 3 jam.

### **3.4.5 Penentuan waktu kontak optimum adsorpsi GASP terhadap Congo red**

Sebanyak 0,1 g GASP dimasukkan pada lima buah Erlenmeyer 250 mL dan ditambahkan 25 mL larutan *Congo red* 50 mg/L pH 3, kemudian dikocok menggunakan *shaker* dengan kecepatan 150 rpm dengan variasi waktu kontak 15, 30, 60, 90 dan 120 menit. Campuran dipisahkan antara filtrat dan adsorben dengan dekantasi. Filtrat kemudian dikondisikan menjadi pH 7 dengan penambahan NaOH 0,01 M. Kemudian diuji konsentrasi *Congo red* sisa dengan spektrofotometer UV-Vis. Proses dilakukan secara triplo.

### **3.4.6 Penentuan pH optimum adsorpsi GASP terhadap Congo red**

Larutan *Congo Red* 25 mL dengan konsentrasi 50 mg/L diatur pH-nya 3, 4, 5, 6, 7, 8, dan 9 dengan penambahan NaOH dan HCl diletakkan pada erlenmeyer 250 mL, kemudian kedalam masing- masing larutan ditambahkan dengan 0,1 g GASP variasi rasio Si/P terpilih. Campuran diaduk dengan kecepatan 150 rpm dengan waktu optimum. Campuran dipisahkan antara filtrat dan adsorben dengan dekantasi. Filtrat kemudian dikondisikan menjadi pH 7 dengan penambahan NaOH 0,01 M atau HCl 0,01 M. Kemudian diuji konsentrasi *Congo red* sisa dengan spektrofotometer UV-Vis. Proses dilakukan secara triplo.

### 3.4.7 Penentuan konsentrasi optimum adsorpsi GASP terhadap *Congo red*

Larutan *Congo red* 25 mL dengan variasi konsentrasi 10, 20, 30, 40, 50, dan 60 mg/L diatur pada pH optimum, kemudian ditambahkan dengan 0,1 g GASP variasi rasio Si/P terpilih dan diaduk dengan kecepatan 150 rpm pada waktu kontak optimum. Campuran dipisahkan antara filtrat dan adsorben dengan dekantasi. Filtrat kemudian dikondisikan menjadi pH 7 dengan penambahan NaOH 0,01 M atau HCl 0,01 M. Kemudian diuji konsentrasi *Congo red* sisa dengan spektrofotometer UV-Vis. Proses dilakukan secara triplo.

### 3.4.8 Penentuan kadar *Congo red*

#### 3.4.8.1 Penentuan panjang gelombang maksimum *Congo red* menggunakan spektrofotometer UV-Vis

Larutan *Congo red* diukur adsorbansinya pada rentang panjang gelombang 400-700 nm pada pH 7 menggunakan spektrofotometer UV-Vis dan dibandingkan dengan panjang gelombang *Congo red* standar.

#### 3.4.8.2 Pembuatan kurva baku *Congo red*

Pembuatan kurva baku dilakukan dengan menggunakan *Congo red* pada konsentrasi 0, 2, 4, 6, 8, dan 10 mg/L. Kemudian diukur pada panjang gelombang maksimum dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Hasil pengukuran dibuat kurva hubungan absorbansi terhadap konsentrasi dan diperoleh persamaan regresi linear.

### 3.4.9 Karakterisasi GASP menggunakan FT-IR

GASP sebanyak 0,1 g dianalisis menggunakan FT-IR tipe *Michelson* yang dicampurkan dengan medium pelar KBr sebanyak 0,4 g. Campuran digerus, dimasukkan dalam *pellet press* dan dikompresi. Setelah itu sampel yang sudah bercampur dengan pelet KBr diletakkan diantara dua celah yang akan dilewati oleh berkas sinar inframerah dengan rentang bilangan gelombang 4000-400  $\text{cm}^{-1}$ . Analisis juga dilakukan pada zeolit aktif dan serbuk ASP sebagai pembanding.

### 3.4.10 Analisis data

Hasil karakterisasi GASP menggunakan FT-IR diperoleh gugus fungsi GASP.

#### 3.4.10.1 Penentuan konsentrasi *Congo red* setelah adsorpsi

Konsentrasi *Congo red* setelah diadsorpsi dari larutan oleh adsorben GASP dapat ditentukan menggunakan persamaan kurva baku sebagai berikut:

$$y = a \cdot x \quad (3.1)$$

Keterangan : y = absorbansi  
x = konsentrasi terukur  
a = slope

Maka konsentrasi *Congo red* setelah adsorpsi ( $C_e$ ) (mg/L) sebagai berikut :

$$C_e = \frac{y}{a} \times fp \quad (3.2)$$

Keterangan: fp = faktor pengenceran

#### 3.4.10.2 Penentuan massa *Congo red* yang diserap pergram adsorben

Setelah didapatkan data konsentrasi *Congo red* yang telah diadsorpsi, massa *congo red* yang diserap per gram adsorben *granul* ASP (q) dihitung dengan rumus sebagai berikut:

$$q = (C_o - C_e) \times \frac{V}{m} \quad (3.3)$$

Keterangan:

$C_o$  = konsentrasi *congo red* sebelum adsorpsi (mg/L)

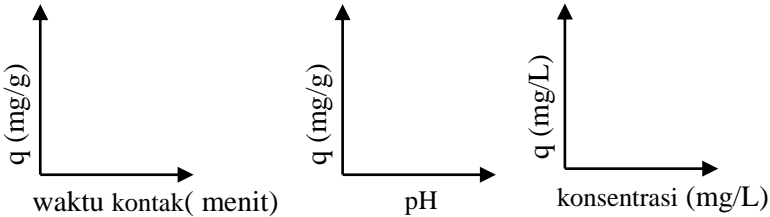
$C_e$  = konsentrasi *congo red* sesudah adsorpsi (mg/L)

V = volume larutan *congo red* yang digunakan saat proses adsorpsi (L)

m = massa adsorben yang digunakan saat proses adsorpsi (g)

### 3.4.10.3 Penentuan kondisi optimum

Penentuan kondisi optimum dibuat dalam bentuk grafik yaitu, hubungan waktu kontak (menit), pH, dan konsentrasi *Congo red* (mg/L) Vs massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben GASP (q).



### 3.4.10.4 Penentuan kapasitas adsorpsi

Penentuan kapasitas adsorpsi juga dibuat dalam bentuk grafik hubungan  $C_e/q$  (sumbu y) terhadap  $C_e$  (sumbu x) berdasarkan persamaan Langmuir sebagai berikut:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_m b} + \frac{1}{q_m} C_e \quad (3.4)$$

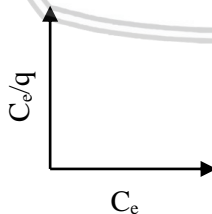
Keterangan :

$C_e$  = konsentrasi ion adsorbat dalam larutan setelah diadsorpsi(mg/L)

q = massa ion adsorbat yang diserap per gram adsorben(mg/g)

b = konstanta Langmuir / parameter afinitas (L/mg)

$q_m$  = kapasitas adsorpsi maksimum (mg/g)



Sehingga diperoleh persamaan linear dengan intersep ( $1/q_m b$ ) dan kemiringan ( $1/q_m$ ).

### 3.4.10.5 Uji statistika

Data yang diperoleh dianalisa, untuk mengetahui pengaruh dari tiap perlakuan dengan uji F pada taraf nyata 5%. Apabila ada perbedaan dilanjutkan dengan uji Beda Nyata Terkecil (BNT) untuk mengetahui perlakuan mana yang memberikan nilai optimum, dengan pola analisis yang disajikan pada Tabel 3.1.

**Tabel 3.1:** Uji statistik adsorpsi *Congo red* oleh adsorben

Perlakuan	Ulangan			Total	Rata-rata
	1	2	3		
A	$Y_{11}$	$Y_{14}$	$Y_{13}$		
B					
C					
Total			$Y_{ii}$		

Untuk uji ada tidaknya pengaruh variasi konsentrasi maka dilakukan uji F dengan cara sebagai berikut:

1. Menghitung Faktor Koreksi (FK)

$$FK = \frac{(\sum_{i=1}^p \sum_{j=1}^n Y_{ij})^2}{p \times n} \quad (3.5)$$

2. Menghitung Jumlah kuadrat (JK)

$$JK_{total} = \sum_{i=1}^p \sum_{j=1}^n Y_{ij}^2 - FK \quad (3.6)$$

$$JK_{perlakuan} = \frac{\sum_{i=1}^p (\sum_{j=1}^n Y_{ij})^2}{n} - FK \quad (3.7)$$

$$JK_{galat} = JK_{total} - JK_{perlakuan} \quad (3.8)$$

3. Menghitung kuadrat tengah (KT) setiap sumber keragaman

$$KT_{\text{perlakuan}} = \frac{JK_{\text{perlakuan}}}{dB_{\text{perlakuan}}} \tag{3.9}$$

$$KT_{\text{galat}} = \frac{JK_{\text{galat}}}{dB_{\text{galat}}} \tag{3.10}$$

4. Menghitung nilai F

$$F_{\text{hitung}} = \frac{KT_{\text{perlakuan}}}{KT_{\text{galat}}} \tag{3.11}$$

Jumlah kuadrat total perlakuan dan galat yang telah diketahui, dibuat tabel analisis variasi seperti yang diperlihatkan pada **Tabel 3.2**

**Tabel 3.2** Tabel analisis sidik ragam satu arah

Sumber keragaman	dB	JK	KT	F <sub>hitung</sub>
Perlakuan	P-1	JK <sub>p</sub>	KT <sub>p</sub>	
Galat	P(n-1)	JK <sub>g</sub>	KT <sub>g</sub>	KT <sub>p</sub> /KT <sub>g</sub>
Total	Pn-1			

Keterangan : p = banyaknya perlakuan  
 n = banyaknya ulangan  
 dB = derajat bebas

Untuk menghitung beda nyata tiap perlakuan, maka dibuat hipotesis nol (H<sub>0</sub>) dan hipotesis alternatif (H<sub>1</sub>) sebagai berikut :

H<sub>0</sub> = tidak ada pengaruh perlakuan

H<sub>1</sub> = minimal 1 pasang perlakuan menunjukkan perbedaan

Jika  $F_{hitung} > F_{tabel}$  maka  $H_0$  ditolak, berarti ada perbedaan nyata perlakuan dan dilakukan uji Beda Nyata Terkecil (BNT)

1. Menentukan BNT

$$BNT(\alpha) = t_{tabel}\left(\frac{\alpha}{2}, dB_g\right) \sqrt{\frac{2KT_g}{n}} \quad (3.12)$$

2. Menghitung beda rata-rata antar perlakuan

3. Menarik kesimpulan

- a. Jika  $BNT(\alpha) > (X_A - X_B)$  berarti ada beda nyata.
- b. Jika  $BNT(\alpha) < (X_A - X_B)$  berarti tidak ada beda nyata





## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1 Aktivasi Zeolit

Zeolit alam yang sudah halus terlebih dahulu dilakukan pengayakan dan pencucian sebelum proses aktivasi. Ukuran ayakan yang digunakan yaitu 150-200 *mesh*, dengan tujuan untuk mendapatkan keseragaman ukuran butiran zeolit antara 150-200 *mesh*. Proses aktivasi zeolit dilakukan secara fisika dan kimia. Aktivasi secara fisika dilakukan dengan mencuci zeolit menggunakan akuades 250 mL dan diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 1 jam. Zeolit disaring dan dikeringkan pada 105°C sehingga diperoleh zeolit 150-200 *mesh* sebanyak 70 g yang berwarna putih kekuningan. Tujuan aktivasi secara fisika yaitu untuk menghilangkan air yang terikat secara fisika, menguraikan senyawa organik yang terperangkap dalam rongga zeolit dan menghilangkan ion-ion yang larut dalam air yang ada di permukaan atau pori-pori zeolit. Sehingga dapat meningkatkan luas permukaan dan memperbesar volume pori zeolit.

Aktivasi secara kimia dilakukan dengan mencampurkan zeolit sebanyak 60 g dengan HCl 0,4 M rasio 1 g zeolit / 10 mL HCl dan diaduk selama 4 jam dengan *magnetic stirrer*. Tujuan aktivasi secara kimia adalah untuk menyeragamkan kation pada zeolit menggunakan HCl dan menghilangkan pengotor yang larut dalam asam seperti senyawa oksida logam. Oksida-oksida logam tersebut yaitu Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO, K<sub>2</sub>O dan TiO<sub>2</sub>. Zeolit hasil aktivasi dibilas dengan akuades hingga pH akuades lalu dikeringkan pada 105°C dan ditimbang hingga berat konstan. Proses pembilasan zeolit dengan akuades bertujuan untuk menghilangkan ion H<sup>+</sup> dan Cl<sup>-</sup> yang tidak terikat pada permukaan zeolit.

### 4.2 Fosfatasi Zeolit

Fosfatasi zeolit bertujuan untuk menggantikan atom Si yang bermuatan netral atau atom Al yang bermuatan negatif dengan atom P yang bermuatan positif melalui proses substitusi isomorfik tanpa mengubah struktur zeolit [9]. Zeolit aktif yang berwarna putih kekuningan sebanyak 1 g dicampur 3,79; 7,59; 11,38; dan 15,18 g NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> dari hasil perhitungan **Lampiran A.4** (rasio Si/P 1/3; 1/6;

1/9; dan 1/12) pada cawan tanur berbeda. Campuran tersebut dipanaskan pada temperatur 235°C selama 5 jam. Kemudian didiamkan pada suhu ruang, lalu dicuci dengan akuades sampai filtrat bebas ion fosfat agar dapat menghilangkan fosfat bebas dan fosfat yang kemungkinan terikat secara fisik pada permukaan atau pori zeolit. Untuk mengetahui filtrat bebas ion fosfat dilakukan uji kualitatif dengan menambahkan larutan  $Mg(NO_3)_2$  [39]. Hal ini ditandai dengan tidak adanya endapan putih dari  $Mg_3(PO_4)_2$  pada filtrat dengan reaksi sebagai berikut:

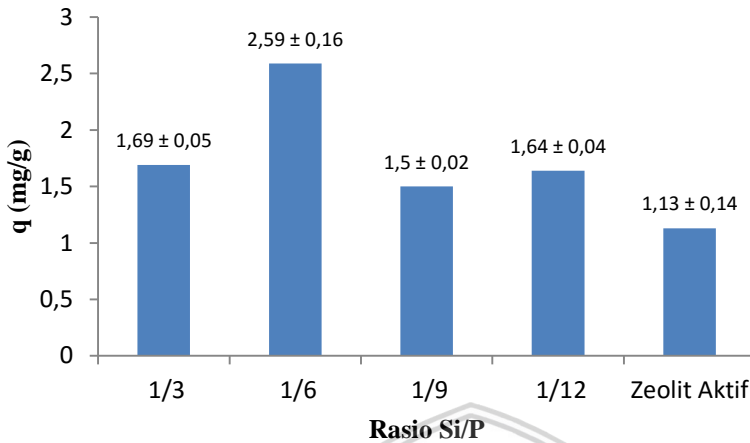


Kemudian zeolit yang telah terfosfatasi dikeringkan pada temperatur 105°C untuk menghilangkan air yang ada di kerangka atau pori-pori zeolit-fosfat. Sehingga diperoleh serbuk *Alumino Silico Phosphate* (ASP) yang berwarna putih keabu-abuan.

### 4.3 Uji Daya Adsorpsi

*Alumino Silico Phosphate* (ASP) sebanyak 0,1 g masing-masing rasio Si/P(1/3; 1/6; 1/9; dan 1/12) ditambahkan pada masing-masing erlenmeyer 250 mL yang berisi 25 mL larutan *Congo red* 50 mg/L pH 3 yang berwarna ungu pekat dan dilakukan pengocokan menggunakan *shaker* dengan kecepatan 150 rpm selama 30 menit. Kemudian disentrifugasi selama 30 menit dengan kecepatan 3000 rpm. Jumlah *Congo red* yang teradsorpsi ditentukan secara tidak langsung, yaitu dengan menentukan konsentrasi *Congo red* sisa menggunakan metode spektrofotometri sinar tampak pada panjang gelombang 498 nm sehingga diperoleh data massa adsorbat yang diserap pergram adsorben ASP seperti pada **Gambar 4.1**.

**Gambar 4.1** menunjukkan bahwa rasio Si/P terbaik adalah 1/6 dengan massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben (q) yaitu sebesar  $2,59 \pm 0,16$  mg/g meningkat dari rasio Si/P 1/3 dengan q sebesar  $1,69 \pm 0,05$  mg/g. Meningkatnya rasio Si/P setelah rasio 1/6, berbanding terbalik dengan nilai q, terbukti dari rasio Si/P 1/9 dan 1/12 dengan q yang lebih rendah yaitu secara berurutan adalah  $1,5 \pm 0,02$  dan  $1,64 \pm 0,04$  mg/g.



**Gambar 4.1** Grafik hubungan antara rasio Si/P terhadap massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben ASP( $q$ ).

Adanya proses substitusi isomorfi pada zeolit terbukti dapat meningkatkan massa *Congo red* yang diserap pergram adsorben dibandingkan hanya dengan zeolit aktif yaitu dengan  $q$   $1,13 \pm 0,14$  mg/g. Hal ini dikarenakan adanya pertukaran ion positif pada struktur  $PO_4^+$  dengan gugus  $SiO_4$  yang bermuatan netral atau dengan gugus  $AlO_4^-$  yang bermuatan negatif menyebabkan tumbuh situs positif yang lebih banyak, sehingga dengan adanya peningkatan situs positif maka akan berbanding lurus dengan daya adsorpsi pada *Congo red* yang merupakan anionik [9].

Berdasarkan uji statistik (**Lampiran G.1**) didapatkan  $F_{hitung}$  (87,144) lebih besar daripada  $F_{tabel}$  5% (3,48), karena  $F_{hitung} > F_{tabel}$  maka  $H_0$  tidak diterima, yaitu ada perbedaan yang nyata dalam perlakuan variasi rasio Si/P sehingga dapat diketahui bahwa variasi rasio Si/P berpengaruh terhadap adsorpsi *Congo red* oleh ASP, kemudian dilanjutkan dengan menggunakan uji BNT (Beda Nyata Terkecil). Uji BNT digunakan untuk mengetahui selisih dari perlakuan setiap rasio Si/P yang berbeda dan membandingkan perbedaan antar variasi berdasarkan nilai uji BNT. Nilai dari uji BNT pada variasi rasio Si/P adalah 0,182. Berdasarkan uji BNT, variasi rasio Si/P 1/6 berbeda nyata dengan rasio 1/3; 1/9; dan 1/12; sehingga dengan memperhatikan nilai  $q$  terbesar, uji annova, serta uji

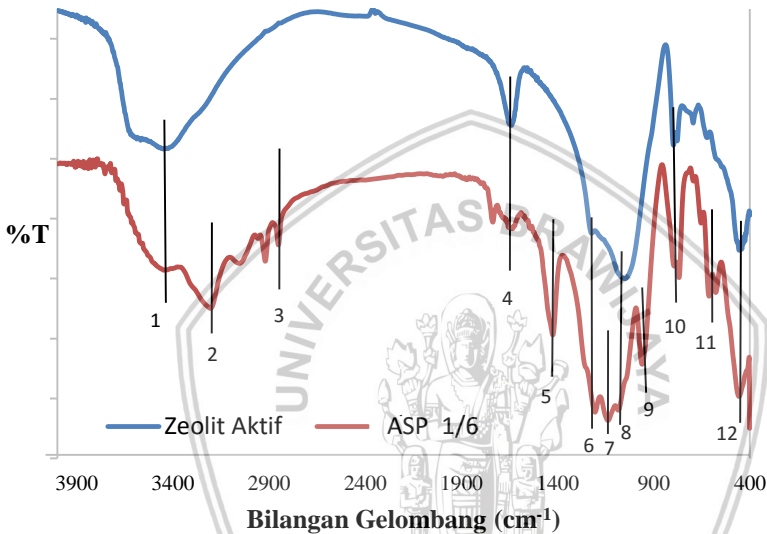
BNT dapat disimpulkan bahwa rasio Si/P 1/6 berpengaruh pada proses adsorpsi serta merupakan rasio Si/P terbaik untuk adsorpsi *Congo red* menggunakan ASP.

#### 4.4 Pembuatan Granul ASP

Natrium alginat sebanyak 2 g dilarutkan dalam 100 mL akuades dalam gelas kimia 250 mL, kemudian diaduk dengan *magnetic stirer* pada temperatur 40°C selama 30 menit, lalu dicampur dengan *Alumino Silico Phosphate* (ASP) sebanyak 6 g dan diaduk kembali dengan *magnetic stirer* hingga homogen. Campuran kemudian dimasukkan dalam jarum *syringe* dan dibiarkan menetes secara manual pada larutan CaCl<sub>2</sub> 3% dan didiamkan selama 1 jam. Amobilisasi dilakukan untuk memperbesar ukuran adsorben dan memiliki bentuk agregat yang stabil sehingga dapat digunakan secara berkelanjutan. Pada penelitian ini, Kalsium alginat dibuat dari natrium alginat yang didispersikan dalam medium yang mengandung kation multivalen seperti kalsium pada larutan CaCl<sub>2</sub> 3% karena adanya proses *crosslinked* (sambung silang). Ion kalsium akan langsung bereaksi dengan gugus karboksilat dan gugus hidroksil dari residu asam guluronat dengan menggantikan ion natrium pada polimer sehingga terbentuk jaringan gel[29]. ASP-Alginat didiamkan selama 1 jam dalam larutan CaCl<sub>2</sub> 3% bertujuan untuk memaksimalkan terjadinya proses sambung silang, sehingga didapatkan granul yang lebih stabil dan tidak mudah pecah. ASP-Alginat kemudian didekantasi dan dicuci menggunakan NaCl 0,85% dan akuades untuk menghilangkan ion natrium dan ion klorida bebas pada permukaan granul, selain itu dengan adanya pencucian dengan NaCl akan membuat granul kering lebih halus dan tidak mengkerut. Granul yang terbentuk kemudian dikeringkan pada temperatur 70°C selama 3 jam untuk menghilangkan air yang ada di kerangka atau pori-pori ASP-alginat. Sehingga diperoleh Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP) yang berwarna putih sebanyak 6,35 g berukuran 1-3 mm. Tujuan dilakukan amobilisasi ini adalah untuk meningkatkan stabilitas adsorben, meningkatkan kekuatan mekanik, meningkatkan kapasitas adsorpsi dan dapat digunakan secara berkelanjutan.

## 4.5 Karakterisasi Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP) Menggunakan FT-IR

Analisis dengan menggunakan FTIR bertujuan untuk mengetahui gugus fungsi yang terkandung di dalam zeolit aktif, ASP dan GASP. Pola spektra IR dari zeolit aktif dan *Alumino Silico Phosphate* (ASP) terdapat pada **Gambar 4.2** dan interpretasi dari pola spektra IR terdapat pada **Tabel 4.1**.



**Gambar 4.2** Spektra inframerah zeolit aktif dan ASP 1/6

Berdasarkan pada **Gambar 4.2** dan **Tabel 4.1** pita nomor 1 muncul regangan gugus O-H pada zeolit aktif yang menandakan adanya H<sub>2</sub>O yang masuk di dalam pori-pori zeolit. Adanya H<sub>2</sub>O diperkuat pada pita nomor 4 muncul tekuk O-H. Gugus O-H pada ASP tidak muncul di pita nomor 1 karena sangat sedikitnya kadar air yang menyebabkan intensitas yang muncul juga sangat rendah (tidak cukup kuat untuk menghasilkan puncak). Pita nomor 2 menunjukkan adanya vibrasi regangan asimetri N-H dari gugus NH<sub>4</sub><sup>+</sup> dari ammonium dihidrogen fosfat yang dihasilkan dari reaksi pertukaran kation-kation dalam kerangka zeolit. Menurut Hayati, E. (2002) kation yang dipertukarkan adalah Na<sup>+</sup> dan K<sup>+</sup> dari filtrat pencucian

zeolit hasil fosfatasi yang telah tertukar dengan amonium. Adanya vibrasi N-H diperkuat dengan munculnya regangan simetri dari gugus amonia pada pita nomer 3 yang merupakan vibrasi tekuk N-H[10].

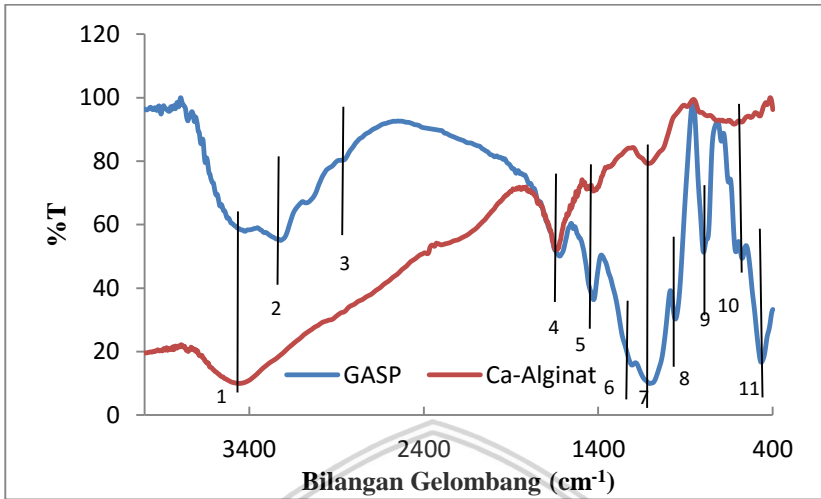
Pita nomor 5, 7, 9 dan 11 berturut-turut menunjukkan adanya regangan gugus P=O, regangan PO<sub>4</sub> (O-P-O), regangan PO<sub>4</sub> (O-P-O) dan tetrahedral PO<sub>4</sub> yang hanya terjadi pada adsorben ASP. Hal ini membuktikan terjadinya substitusi isomorfi antara gugus alumina (AlO<sub>4</sub><sup>-</sup>) dan silika (SiO<sub>4</sub>) dengan fosfat (PO<sub>4</sub><sup>+</sup>) saat proses fosfatasi dengan adanya gugus baru yaitu gugus fosfat. Selain itu, adanya substitusi isomorfi dibuktikan dengan adanya pergeseran bilangan gelombang dari besar menjadi lebih kecil. Pergeseran bilangan gelombang terjadi pada pita nomor 6 dan 10 berturut-turut regangan asimetris *external linkage* (O-Si-O dan O-Al-O) 1222,79 cm<sup>-1</sup> dan regangan simetris internal tetrahedral (O-Si-O dan O-Al-O) 777,26 cm<sup>-1</sup> dari zeolit aktif bergeser menjadi 1205,43 cm<sup>-1</sup> dan 767,62 cm<sup>-1</sup>. Sesuai dengan hukum Hooke yang menyatakan bahwa meningkatnya massa antar atom yang berikatan yaitu dari massa atom Si-O (Mr: 42,98 g/mol) dan Al-O (Mr: 44,084 g/mol) menjadi P-O (Mr: 46,972 g/mol) maka menyebabkan bilangan gelombang bergeser ke daerah yang lebih rendah[47]. Walaupun mengalami pergeseran, pada pita nomor 6 dan 10 dari adsorben ASP masih menghasilkan puncak yang menandakan tidak semua gugus alumina (AlO<sub>4</sub><sup>-</sup>) dan silika (SiO<sub>4</sub>) digantikan oleh gugus fosfat (PO<sub>4</sub><sup>+</sup>). Apabila spektra IR ASP dibandingkan dengan spektra IR NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (**Lampiran H.8**) menunjukkan kemiripan gugus fungsi antar keduanya. Adanya gugus baru yaitu gugus fosfat, pergeseran bilangan gelombang ke bilangan gelombang yang lebih rendah dan kemiripan spektra IR ASP dengan NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> dapat disimpulkan bahwa substitusi isomorfi telah berhasil dilakukan.

**Tabel 4.1** Interpretasi spektra inframerah zeolit aktif dan ASP

No	Zeolit Aktif (cm <sup>-1</sup> )	ASP 1/6 (cm <sup>-1</sup> )	Jenis Vibrasi dan Gugus Fungsi
1	3425, 34	-	Regangan O-H [33,40,41]
2	-	3205,47	Regangan asimetri N-H (NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> )[42]
3	-	2850,59	Regangan simetri N-H (NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> )[42]
4	1652,88	1639,38	Gugus Karbonil C=O (Tekuk O-H) [33,40]
5	-	1423,37	Regangan (P=O)[42,45]
6	1222,79	1205,43	Regangan asimetris <i>external linkage</i> (O-Si-O dan O-Al-O)[43]
7	-	1137,92	Regangan PO <sub>4</sub> (O-P-O)[42,45]
8	1047,27	1083,92	Regangan asimetris internal tetrahedral (O-Si-O dan O-Al-O)[33,45]
9	-	960,48	Regangan PO <sub>4</sub> (O-P-O)[42,44]
10	777,26	767,62	Regangan simetris <i>external linkage</i> (O-Si-O dan O-Al-O)[43]
11	-	576,68	Tetrahedral PO <sub>4</sub> (O-P-O)[44]
12	455,17	455,17	Tekuk tetrahedral (Si-O-Si dan Al-O-Al)[33,42]

Pola spektra IR dari Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP) dan Granul Ca-Alginat terdapat pada **Gambar 4.3** dan interpretasi dari pola spektra IR terdapat pada **Tabel 4.2** Berdasarkan **Gambar 4.3** menunjukkan kemiripan gugus fungsi dari keduanya. Identifikasi gugus fungsional pada GASP dan Granul Ca-Alginat menunjukkan adanya vibrasi ulur -OH (gugus hidroksil), vibrasi ulur C=O simetris dan asimetris (gugus karbonil), vibrasi ulur -CH (gugus alkil), dan vibrasi C=C (gugus alken).





Gambar 4.3 Spektra inframerah GASP dan Ca-Alginat

Tabel 4.2 Interpretasi spektra inframerah GASP dan Ca-Alginat

No	GASP (cm <sup>-1</sup> )	Ca-Alginat (cm <sup>-1</sup> )	Jenis Vibrasi dan Gugus Fungsi
1	3425,34	3452,34	Regangan O-H [33,34]
2	3220,90	-	Regangan asimetri N-H (NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> )[42]
3	2860,24	-	Regangan simetri N-H (NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> )[42]
4	1618,17	1637,45	Gugus Karbonil C=O (Tekuk O-H)[34]
5	1425,30	1427,23	Regangan (P=O) dan regangan simetri C=O (alginat) [34,42]
6	1205,43	-	Regangan asimetris <i>external linkage</i> (O-Si-O dan O-Al-O)[43]
7	1105,14	1114,23	Regangan PO <sub>4</sub> (O-P-O) dan -CH(alginat)[42,46]
8	956,63	-	Regangan PO <sub>4</sub> (O-P-O)[42,44]
9	796,55	-	Regangan simetris <i>external linkage</i> (O-Si-O dan O-Al-O)[43]
10	574,75	572,82	Tetrahedral PO <sub>4</sub> (O-P-O, O=P-O) Vibrasi Alken C=C dan Ca-O(alginat)[44,46]
11	464,81	-	Tekuk tetrahedral (Si-O-Si dan Al-O-Al)[33,42]



Karakteristik dari zeolit terfosfatasi pun masih tajam terlihat setelah ASP menjadi granul (GASP). Terdapat beberapa gugus fungsi yang tertutup atau tidak terlalu jelas seperti gugus karbonil, gugus alkil, dan gugus alken yang memiliki intensitas rendah pada GASP. Hal ini dimungkinkan terjadi karena adanya tumpang tindih dengan gugus fosfat yang intensitasnya sangat tajam. Kemiripan spectra IR GASP dan Ca-Alginat menunjukkan bahwa zeolit terfosfatasi telah berhasil terjebak dalam alginat membentuk Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP).

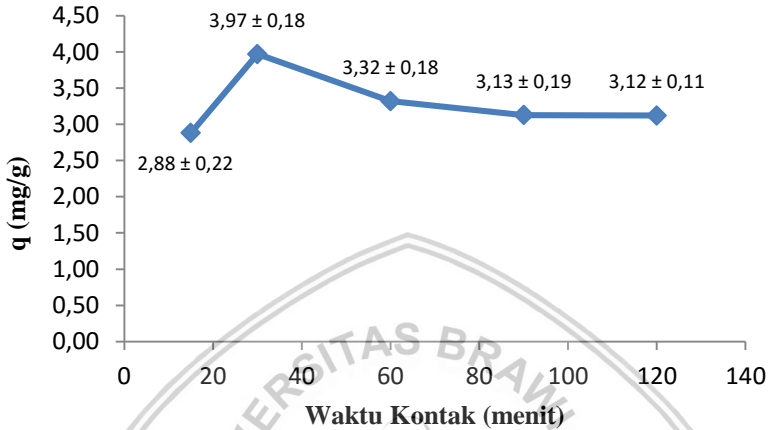
#### 4.6 Pengaruh Waktu Kontak terhadap Adsorpsi *Congo red* pada GASP

Pada penelitian ini dipelajari pengaruh variasi waktu kontak dengan menambahkan GASP sebanyak 0,1 g ke dalam 25 mL larutan *Congo red* 50 mg/L pH 3 dan dilakukan pengocokan menggunakan *shaker* dengan kecepatan 150 rpm. Jumlah *Congo red* yang teradsorpsi ditentukan secara tidak langsung, yaitu dengan menentukan konsentrasi *Congo red* sisa dengan metode spektrofotometri sinar tampak pada panjang gelombang 498 nm sehingga diperoleh data massa adsorbat yang diserap per gram adsorben GASP seperti pada **Gambar 4.4**.

**Gambar 4.4** menunjukkan bahwa waktu optimum pada proses adsorpsi terjadi pada 30 menit dengan massa ion *Congo red* yang diserap per gram adsorben ( $q$ ) yaitu sebesar  $3,97 \pm 0,18$  mg/g.  $q$  mengalami peningkatan dari waktu kontak 15 menit dengan  $q$  adalah  $2,88 \pm 0,22$  mg/g. Meningkatnya  $q$  dikarenakan pada awal proses adsorpsi ketersediaan situs positif/sisi aktif dan ruang pada pori-pori adsorben GASP yang besar serta perbedaan konsentrasi *Congo red* antara adsorbat dan adsorben yang besar. Hal tersebut menyebabkan proses perpindahan massa *Congo red* dari adsorbat ke adsorben GASP berjalan dengan cepat [48].

Sedangkan untuk waktu kontak 60 menit sampai 120 menit,  $q$  mengalami penurunan secara berurutan yaitu sebesar  $3,32 \pm 0,18$ ;  $3,13 \pm 0,19$ ; dan  $3,12 \pm 0,11$  mg/g. Penurunan massa *Congo red* yang teradsorpsi terjadi karena situs positif/sisi aktif pada adsorben GASP sudah terisi penuh oleh *Congo red* sehingga adsorben mengalami kejenuhan dan menyebabkan terjadinya proses desorpsi/terlepasnya *Congo red* dari adsorben kembali ke adsorbat. Sesuai dengan teori

bahwa pada waktu tertentu massa *Congo red* yang teradsorpsi akan meningkat kemudian mengalami penurunan saat setelah konsentrasi *Congo red* mengalami kesetimbangan di dalam adsorben dan adsorbat [48].

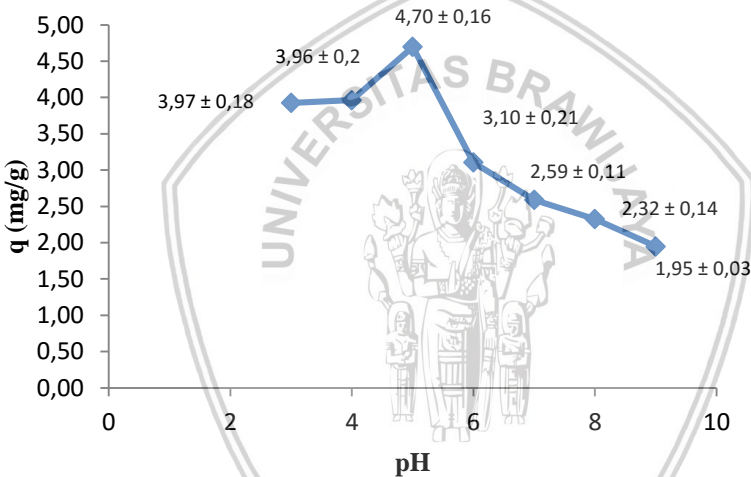


**Gambar 4.4** Grafik hubungan waktu kontak adsorpsi terhadap massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben GASP ( $q$ ).

Hal ini lebih ditegaskan dengan hasil uji statistik terhadap data waktu kontak. Berdasarkan uji statistik (**Lampiran G.2**) didapatkan  $F_{hitung}$  (15,678) lebih besar daripada  $F_{tabel}$  5% (3,48), karena  $F_{hitung} > F_{tabel}$  maka  $H_0$  tidak diterima, yaitu ada perbedaan yang nyata dalam perlakuan waktu kontak sehingga dapat diketahui bahwa waktu kontak berpengaruh terhadap adsorpsi *Congo red* oleh GASP, kemudian dilanjutkan dengan menggunakan uji BNT (Beda Nyata Terkecil). Uji BNT digunakan untuk mengetahui selisih dari perlakuan setiap waktu kontak yang berbeda. Nilai dari uji BNT pada variasi waktu kontak senilai 0,328. Berdasarkan uji BNT, variasi waktu kontak 30 menit berbeda nyata dengan waktu kontak 15, 60, 90, dan 120 menit sehingga dengan memperhatikan nilai  $q$  terbesar, uji annova, serta uji BNT dapat disimpulkan bahwa waktu kontak 30 menit berpengaruh pada proses adsorpsi serta merupakan waktu kontak optimum untuk adsorpsi *Congo red* menggunakan GASP.

## 4.7 Pengaruh pH terhadap Adsorpsi *Congo red* pada GASP

Pada penelitian ini dipelajari pengaruh pH dengan menambahkan GASP sebanyak 0,1 g ke dalam 25 mL larutan *Congo red* 50 mg/L dan dilakukan pengocokan menggunakan *shaker* dengan kecepatan 150 rpm selama waktu kontak optimum yaitu 30 menit. Variasi pH yaitu 3, 4, 5, 6, 7, 8, dan 9. Jumlah *Congo red* yang teradsorpsi ditentukan secara tidak langsung, yaitu dengan menentukan konsentrasi *Congo red* sisa dengan metode spektrofotometri sinar tampak pada panjang gelombang 498 nm sehingga diperoleh data massa adsorbat yang diserap per gram adsorben GASP seperti pada **Gambar 4.5**.



**Gambar 4.5** Grafik hubungan pH adsorpsi terhadap massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben GASP (q).

**Gambar 4.5** menunjukkan bahwa pH optimum pada proses adsorpsi terjadi pada pH 5 dengan massa ion *Congo red* yang diserap per gram adsorben (q) yaitu sebesar  $4,70 \pm 0,16$  mg/g. q mengalami peningkatan dari pH 3 ke pH 4 dengan q masing-masing secara berurutan adalah  $3,97 \pm 0,18$  dan  $3,96 \pm 0,20$  mg/g. Sedangkan untuk pH 6 hingga 9, q mengalami penurunan secara berurutan yaitu  $3,10 \pm 0,21$ ;  $2,59 \pm 0,11$ ;  $2,32 \pm 0,14$ ; dan  $1,95 \pm 0,03$  mg/g. Kondisi pH

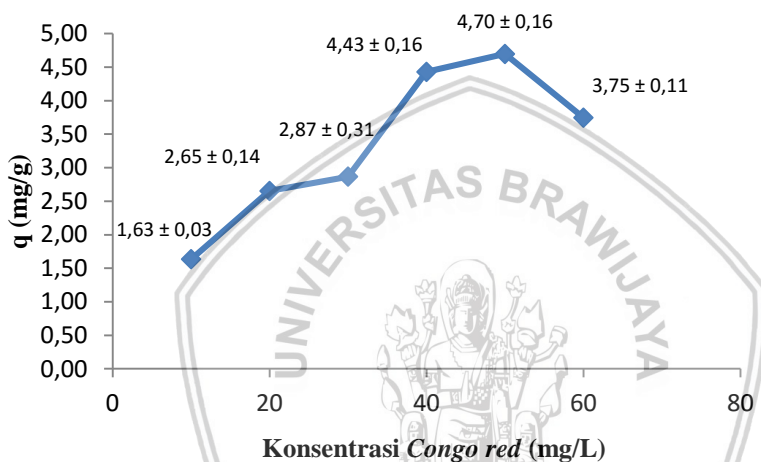
sistem mengakibatkan perubahan distribusi muatan pada adsorben GASP dan zat warna sebagai akibat terjadinya reaksi protonasi dan deprotonasi gugus-gugus fungsional. *Congo red* memiliki pKa 4,1(25°C) maka apabila kondisi pH berada dibawah pKa *Congo red* banyak dalam bentuk molekul, sedangkan apabila pH berada diatas pKa maka *Congo red* banyak dalam bentuk anionnya. Begitupula dengan adsorben GASP yang terprotonisasi dan bermuatan semakin positif pada pH rendah, dan bermuatan negatif pada pH tinggi karena terdeprotonisasi gugus hidroksil permukaan [49].

Meningkatkan  $q$  pada pH 3 hingga 5 karena zat warna *Congo red* masih banyak dalam bentuk molekul sehingga adsorpsi dengan GASP masih belum terjadi secara optimal. Sedangkan setelah pH 5, *Congo red* yang banyak dalam bentuk anionnya mengalami penurunan  $q$  karena dengan meningkatnya pH maka disaat bersamaan konsentrasi OH<sup>-</sup> juga meningkat sehingga menghambat adsorpsi karena menjadi pesaing dengan anion *Congo red* untuk teradsorpsi pada GASP. Selain itu GASP pada pH yang tinggi juga akan terdeprotonisasi yang menyebabkan semakin berkurangnya situs positif pada adsorben. Hal ini lebih ditegaskan dengan hasil uji statistik terhadap data variasi pH. Berdasarkan uji statistik(Lampiran G.3) didapatkan  $F_{hitung}$  (127,550) lebih besar daripada  $F_{tabel}$  5% (2,85), karena  $F_{hitung} > F_{tabel}$  maka  $H_0$  tidak diterima, yaitu ada perbedaan yang nyata dalam perlakuan variasi pH sehingga dapat diketahui bahwa pH berpengaruh terhadap adsorpsi *Congo red* oleh GASP, kemudian dilanjutkan dengan menggunakan uji BNT (Beda Nyata Terkecil). Uji BNT digunakan untuk mengetahui selisih dari perlakuan setiap variasi pH yang berbeda. Nilai dari uji BNT pada variasi pH adalah 0,270. Berdasarkan uji BNT, variasi pH 5 berbeda nyata dengan pH 3, 4, 6, 7, 8, dan 9 sehingga dengan memperhatikan nilai  $q$  terbesar, uji annova, serta uji BNT dapat disimpulkan bahwa pH 5 berpengaruh pada proses adsorpsi serta merupakan pH optimum untuk adsorpsi *Congo red* menggunakan GASP.

#### **4.8 Menentukan Kapasitas Adsorpsi dengan Variasi Konsentrasi *Congo red***

Pada penelitian ini dipelajari pengaruh konsentrasi *Congo red* terhadap kapasitas adsorpsi pada GASP dengan menambahkan

0,1 g adsorben GASP ke dalam 25 mL larutan *Congo red* 10, 20, 30, 40, 50, dan 60 mg/L. Kemudian dilakukan pengocokan menggunakan *shaker* dengan kecepatan 150 rpm dan menggunakan waktu kontak optimum yaitu 30 menit (**Hasil 4.6**) serta pH optimum yaitu pH 5 (**Hasil 4.7**). Jumlah *Congo red* yang teradsorpsi ditentukan secara tidak langsung, yaitu dengan menentukan konsentrasi *Congo red* sisa dengan metode spektrofotometri sinar tampak pada panjang gelombang 498 nm sehingga diperoleh data massa adsorbat yang diserap pergram adsorben GASP seperti pada **Gambar 4.6**

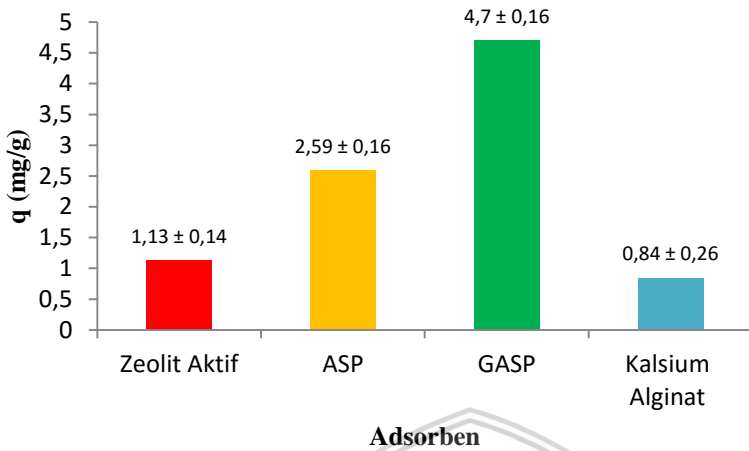


**Gambar 4.6** Grafik hubungan variasi konsentrasi *Congo red* terhadap massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben GASP (q).

**Gambar 4.6** menunjukkan bahwa semakin besar konsentrasi *Congo red* maka semakin besar pula massa *Congo red* yang teradsorpsi oleh GASP. Massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben (q) terus mengalami kenaikan dari konsentrasi 10 mg/L sampai 50 mg/L berturut-turut  $1,63 \pm 0,03$ ;  $2,65 \pm 0,14$ ;  $2,87 \pm 0,31$ ; dan  $4,43 \pm 0,16$  mg/g. Hal ini terjadi karena adsorben GASP memiliki pori-pori dan situs positif/sisi aktif yang besar sehingga dibutuhkan lebih banyak lagi massa *Congo red*/konsentrasi *Congo red* yang lebih besar untuk sepenuhnya menempati semua sisi aktif tersebut sampai mengalami kejenuhan. Namun pada konsentrasi 60

mg/L justru harga  $q$  mengalami penurunan yaitu menjadi  $3,75 \pm 0,11$ . Penurunan ini dikarenakan sudah tercapainya kondisi kesetimbangan sehingga massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben mengalami penurunan. Sesuai dengan teori yang menyatakan bahwa semakin besar konsentrasi adsorbat, semakin banyak jumlah zat terlarut yang dapat diadsorpsi sampai tercapai kondisi kesetimbangan, yaitu laju zat yang diserap sama dengan laju zat yang dilepas dari adsorben pada temperatur tertentu [27]. Hal ini lebih ditegaskan dengan hasil uji statistik terhadap data variasi konsentrasi adsorbat. Berdasarkan uji statistik (**Lampiran G.4**) didapatkan  $F_{hitung}$  (12,56) lebih besar daripada  $F_{tabel}$  5% (3,11), karena  $F_{hitung} > F_{tabel}$  maka  $H_0$  tidak diterima, yaitu ada perbedaan yang nyata dalam perlakuan variasi konsentrasi adsorbat sehingga dapat diketahui bahwa konsentrasi adsorbat berpengaruh terhadap adsorpsi *Congo red* oleh GASP, kemudian dilanjutkan dengan menggunakan uji BNT (Beda Nyata Terkecil). Uji BNT digunakan untuk mengetahui selisih dari perlakuan setiap variasi konsentrasi adsorbat yang berbeda. Nilai dari uji BNT pada variasi konsentrasi adsorbat adalah 1,4858. Berdasarkan uji BNT, variasi konsentrasi 50 mg/L berbeda nyata dengan konsentrasi 10, 20, 30, dan 40 mg/L. Namun tidak berbeda nyata dengan konsentrasi 60 mg/L dikarenakan telah mencapai kondisi kesetimbangan sehingga keduanya memiliki nilai  $q$  yang cenderung hamper sama. Memperhatikan nilai  $q$  terbesar, uji annova, serta uji BNT dapat disimpulkan bahwa konsentrasi 50 mg/L berpengaruh pada proses adsorpsi serta merupakan konsentrasi optimum untuk adsorpsi *Congo red* menggunakan GASP.

Berdasarkan **Gambar 4.7** dapat diketahui perbandingan masing-masing adsorben berbeda terhadap massa *Congo red* yang diserap. Adsorben GASP memiliki  $q$  yang lebih besar dibandingkan dengan jenis adsorben lainnya (zeolit aktif dan ASP) yaitu sebesar  $4,70 \pm 0,16$  mg/g. Hal ini terjadi karena pada adsorben GASP memiliki gugus/situs positif yang besar dari hasil proses fosfatasi zeolit dengan  $NH_4H_2PO_4$  dan penambahan alginat sehingga mampu mengadsorpsi anion/ *Congo red* lebih banyak. Gugus/situs positif yang berperan yaitu  $PO_4^+$  pada layer zeolit terfosfatasi. Pengaruh zeolit yang terfosfatasi juga dapat diketahui dari nilai  $q$  ASP yaitu  $2,59 \pm 0,16$  mg/g yang lebih besar dibandingkan dengan zeolit aktif yaitu  $1,13 \pm 0,14$  mg/g.

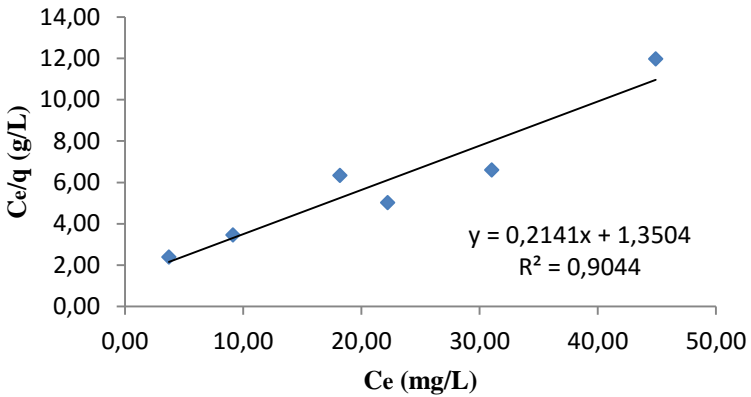


**Gambar 4.7** Grafik massa *Congo red* yang diserap per gram oleh adsorben berbeda.

Hal ini sesuai dengan teori bahwa pada pada proses fosfatasi struktur  $\text{SiO}_4$  bermuatan netral atau  $\text{AlO}_4^-$  bermuatan negatif di dalam zeolit akan digantikan dengan struktur  $\text{PO}_4^{3-}$  yang bermuatan positif yang menyebabkan muatan positif pada zeolit meningkat sehingga kapasitas adsorpsi maksimum juga ikut meningkat[9]. Reaksi pergantian gugus fungsi pada substitusi isomorfik sesuai pada **Gambar 2.6**. Sedangkan pengaruh dari penambahan alginat dapat diketahui dari nilai massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben kalsium alginat saja yaitu dengan harga  $q$   $0,84 \pm 0,26$  mg/g. Hal ini menunjukkan bahwa alginat juga turut andil dalam peningkatan proses adsorpsi melalui amobilisasi ASP. Selain berfungsi sebagai perekat dalam pembuatan granul sehingga mudah dalam proses pemisahan, penambahan alginat juga dapat meningkatkan kapasitas adsorpsi dengan adanya interaksi dari gugus aktif alginat.

Berdasarkan data yang diperoleh pada **Gambar 4.6** ditentukan kapasitas adsorpsi maksimum adsorben GASP dengan menggunakan persamaan Langmuir. Persamaan Langmuir mengasumsikan bahwa kapasitas adsorpsi maksimum terjadi pada lapisan tunggal (*monolayer*) adsorbat di permukaan adsorben [28]. Grafik persamaan Langmuir dapat terlihat pada **Gambar 4.8**





**Gambar 4.8** Grafik persamaan Langmuir GASP dari konsentrasi *Congo red* setelah proses adsorpsi ( $C_e$ ) terhadap konsentrasi per massa *Congo red* yang diserap per gram adsorben ( $C_e/q$ ).

Berdasarkan **Gambar 4.8** diperoleh harga koefisien determinasi  $R^2 \geq 0,9$  (mendekati 1) yang menunjukkan bahwa persamaan  $y = 0,2141x + 1,3504$  memenuhi persamaan Langmuir dengan  $R^2 = 0,9044$ . Kapasitas adsorpsi maksimum ( $q_m$ ) pada adsorben GASP dapat ditentukan dari nilai slope atau kemiringan ( $1/q_m$ ) dengan nilai slope 0,2141 yaitu sebesar 4,67 mg/g (**Lampiran E.1**). Berdasarkan persamaan Langmuir dapat ditentukan harga konstanta Langmuir ( $b$ ) dari nilai intersep ( $1/q_{mb}$ ) sehingga diperoleh nilai konstanta Langmuir adalah 0,1586 L/mg (**Lampiran E.2**). Konstanta Langmuir menunjukkan kekuatan ikatan molekul adsorbat pada permukaan adsorben sehingga semakin besar nilai konstanta Langmuir maka semakin kuat ikatan adsorpsinya. Berdasarkan nilai konstanta Langmuir maka adsorpsi *Congo red* pada GASP memiliki ikatan yang lemah.

Energi adsorpsi ( $E_{ads}$ ) yang merupakan energi dari satu mol ion *Congo red* yang teradsorpsi pada adsorben memiliki nilai ekuivalen dengan nilai negatif dari perubahan energi bebas Gibbs standart ( $\Delta G^\circ$ ), nilai negatif dari  $\Delta G^\circ$  menunjukkan reaksi terjadi secara spontan yaitu ketika adsorbat dikontakkan dengan adsorben maka proses adsorpsi langsung terjadi [50], dari persamaan  $\Delta G^\circ$  dapat diketahui nilai energi adsorpsi adalah 386,35 J/mol (**Lampiran**



**E.3).** Menurut Adamson (1990) suatu adsorpsi berlangsung secara kimia jika mempunyai energi adsorpsi yang lebih besar dari 20 kJ/mol sedangkan adsorpsi fisika terjadi pada energy yang lebih rendah dari 20 kJ/mol [51]. Berdasarkan harga energi adsorpsi dapat disimpulkan bahwa penelitian adsorpsi *Congo red* pada Granul *Alumino Silico Phosphate* (GASP) merupakan adsorpsi fisika yang memiliki ikatan adsorpsi lemah.



## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan dapat ditarik kesimpulan bahwa :

1. Hasil karakterisasi dengan FTIR menunjukkan keberhasilan proses fosfatasi yang dibuktikan dengan muncul gugus baru serapan tetrahedral  $\text{PO}_4^+$ , serta dikuatkan dengan adanya pergeseran bilangan gelombang ke daerah yang lebih rendah dari serapan tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4^-$ , sesuai dengan hukum Hooke.
2. Fosfatasi berpengaruh terhadap daya adsorpsi *Congo red* pada ASP dengan meningkatkan massa *Congo red* yang teradsorpsi per gram adsorben. Variasi rasio Si/P terbaik adalah 1/6.
3. Waktu kontak optimum dan pH optimum berpengaruh pada peningkatan massa *Congo red* yang teradsorpsi per gram adsorben. Kondisi optimum adsorpsi tercapai pada waktu kontak 30 menit dan pH 5.
4. Kapasitas adsorpsi GASP terhadap *Congo red* pada kondisi optimum adsorpsi tersebut diketahui sebesar 4,67 mg/g.

#### 5.2 Saran

Untuk mendapatkan hasil adsorpsi yang optimal, perlu dilakukan penelitian lanjutan tentang adsorpsi *Congo red* dengan metode lain yang lebih modern dan lebih mudah dilakukan, serta perlu dikaji pengaruh variasi lain seperti temperature dan ukuran adsorben sehingga zeolit dapat mengadsorpsi lebih maksimal.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] Namasivayam, C. dan Kavitha, D., 2002, **Removal of Congo Red from Water by Adsorption onto Activated Carbon Prepared from Coir Pith, an Agricultural Solid Waste**, *Dyes and Pigments*, vol.54, 47-58.
- [2] Saraswati, I., Diantariani, N., dan Suarya, P., 2015, **Fotodegradasi Zat Warna Tekstil Congo Red dengan Fotokatalis ZnO-Arang Aktif dan Sinar Ultraviolet(UV)**, *Jurnal Kimia* 9, vol.2, 175-182.
- [3] Chatterjee, S., Lee, D., Lee, M.W., dan Woo, S.,2009, **Enhanced Adsorption of Congo Red from Aqueous Solutions by Chitosan Hydrogel Granul Impregnated with Cetyl Trimethyl Ammonium Bromide**, *Bioresource Technology*, vol. 100, 2803–2809.
- [4] Bentahar, S., Dbik, A., Khomril, M., Messaodil, N., Bakiz, B., dan Lacherai, A., 2016, **Study of Removal of Congo Red by Local Natural Clay**, Vol,17(3), 297-307.
- [5] Lemoine, G., 2013, **Comparison of Different Types of Zeolites Used As Solid Acid Catalysis in The Transesterificatin Reaction of Jatropha-type Oil for Biodiesel Production**, Worcester Polytechnic Institute.
- [6] Wirawan, S.K., Sudiby, H., dan Setiaji, M. F., 2015, **Development of Natural Zeolits Adsorbent: Chemical Analysis and Preliminary TPD Adsorption Study X – Ray Diffraction Agent**, no. 3, 87–95.
- [7] Atmaja, R., 2017, **Aktivasi Zeolit Alam dengan Asam Sulfat sebagai Katalis Reaksi Esterifikasi Pembuatan Triasetin**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Islam Negeri Sunan Kalijaga, Yogyakarta.

- [8] Hilyati dan Widhastono, B., 1991, **Adsorpsi Zat Warna Tekstil pada Zeolit Alam dari Bayah**, Jurnal Kimia Terapan Indonesia, Vol.1, 65-70.
- [9] Suraya, Z., 2003, **Pengaruh Variasi pH Larutan dan Konsentrasi Adsorbat Terhadap Adsorpsi Anion yang Dibentuk Cr(VI) oleh Zeolit Hasil Fosfatasi**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [10] Hayati, E., 2002, **Studi Pengaruh Jenis Senyawa Fosfat terhadap Fosfatasi Zeolit Alam**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [11] Kragovi'c, M., Pasalic, S., Markovic', M., Petrovic, M., Nedeljkovic, B., Momc'ilovic', M., dan Stojmenovic, M., 2018, **Natural and Modified Zeolit-Alginate Composites. Application for Removal of Heavy Metal Cations from Contaminated Water Solutions**, Minerals, Vol 8, 2-16.
- [12] Rowe, R., 2009, **Handbook of Pharmaceutical Excipient 6th edition**, Pharmaceutical Press and American Pharmacists Association, London.
- [13] Singh, L., Pavankumar, A., Lakshmanan, R., dan Rajarao, G., 2011, **Effective Removal of Cu<sup>2+</sup> Ions from Aqueous Medium Using Alginate as Biosorbent**, Ecological Engineering. Eng. 38 (2012) 119– 124.
- [14] Prameswari, T., 2013, **Sintesis Membran Kitosan-Silika Abu Sekam Padi untuk Dekolorisasi Zat Warna Congo Red**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang, Semarang.
- [15] Agusty, I., 2012, **Penggunaan Zeolit Terimpregnasi TiO<sub>2</sub> untuk Mendegradasi Zat Warna Congo Red**, Skripsi,

Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Airlangga, Surabaya.

- [16] Suminta, S., 2006, **Karakterisasi Zeolit Alam dengan Metode Difraksi Sinar-X**, Jurnal Zeolit Indonesia, Vol 5(2), 53-68.
- [17] J.Szerement, A., Ambrożewicz-Nita, A., Kędziora, K., dan Piasek, J., 2014, **Use of Zeolit in Agriculture and Enviromental Protection. A Short Review**, Department of Physical Chemistry of Porous Material, 172–177.
- [18] Ulmanu, M., 2012, **Handbook of Natural Zeolits**, Bentham E-books, Romania.
- [19] Ruthven, D. M., 1984, **Principles of Adsorption & Adsorption Processes**, John Wiley & Sons, New York
- [20] Chmielewka, E., 2014, **Environmental Zeolits and Aqueous Media: Examples of Practical Solutions**, Bentham E-books, Romania.
- [21] Firdaus, A., 2009, **Aplikasi Bentonit-Zeolit dalam Meningkatkan Mutu Minyak Akar Wangi Hasil Penyulingan Daerah Kabupaten Garut**, Skripsi, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Pertanian Bogor, Bogor.
- [22] Smith, B.T., 2013, **Ammonium Phosphate Monobasic MSDS**, Sciencelab.com, 1–5
- [23] Setiyanto, D.E., 2003, **Fosfatasi dan Karakterisasi Zeolit Alam Turen**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang.
- [24] Mohammadi, M. H. dan Faghihian, H., 2008, **Archive of SID Isomorphous Substitution of P (V) in Natural Clinoptilolite : Evaluation of the Product for Removal of**

$\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$  and  $\text{F}^-$  from Aqueous Solutions, vol. 27, no. 4, 115–118.

- [25] Arfan, Y., 2016, **Pembuatan Karbon Aktif Berbahan Dasar Batubara dengan Perlakuan Aktivasi Terkontrol serta Uji Kinerjanya**, Skripsi, Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia, Jakarta.
- [26] Suryawan, B., 2004, **Karakteristik Zeolit Indonesia sebagai Adsorben Uap Air**, Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia, Jakarta.
- [27] Do, D.D., 1998, **Adsorption Analysis: Equilibria and Kinetics**. Imperial College Press, London.
- [28] Handayani, M. dan Sulistiyono, E., 2009, **Uji Persamaan Langmuir dan Freundlich pada Penyerapan Limbah Chrom (VI) oleh Zeolit**, Pros. Seminar Nasional Sains dan Teknologi Nuklir. PTNBR, Bandung, 130–136.
- [29] Mørch, Y., 2008, **Novel Alginate Microcapsules for Cell Therapy**, NTNU-trykk, Norwegian.
- [30] Utami, U., 2012, **Preparasi dan Karakterisasi Granul Kalsium-Alginat Pentoksifillin dengan Metode Gelasi Ion**, Skripsi, Departemen Farmasi, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia, Depok.
- [31] Suratman, A., Kunarti, E.S., Aprilita, N.H, dan Pamurtya, I.C., 2017, **Adsorption of  $\text{CO}_2$  by Alginate Immobilized Zeolit Granul**, AIP Conference Proceedings 1823, 020118 (2017).
- [32] Stuart, B., 2004, **Infrared Spectroscopy: Fundamental and Applications**, John Wiley & Sons, Ltd, France.
- [33] Utubira, Y., Wijaya, K., dan Sugiharto, E., 2006, **Preparation and Characterization of  $\text{TiO}_2$ - Zeolit and its Application to**

**Degrade Textile Wastewater by Photocatalytic Method,**  
Indo J .Chem, vol. 6, pp. 231–237.

- [34] Kosman, R., 2011, **Pemurnian Natrium Alginat Dari Sargassum Duplicatum J.G. Agardh, Turbinaria Decurrens (Bory) Dan Turbinaria Ornata (Turner) J. Argardh Asal Perairan Ternate, Maluku Utara,** Majalah Farmasi dan Farmakologi, Vol. 15, No. 1, 30 – 34.
- [35] Zare, K., Sadegh, H., Shahryari, R., Maazinajad, B., Ali, V., Tyagi, I., Agarwal, S., dan Kumar, V., 2015, **Enhanced Removal of Toxic Congo red Dye Using Multi Walled Carbon Nanotubes: Kinetic, Equilibrium Studies and its Comparison with Other Adsorbents,** Jurnal of Molecular Liquids 212, 266-271.
- [36] Neldawati, Ratnawulan dan Gusnedi, 2013, **Analisis Nilai Absorbansi dalam Penentuan Kadar Flavonoid untuk Berbagai Jenis Daun Tanaman Obat,** Pillar of Physics, vol. 2, 76–83.
- [37] Ewing, G.W., 1985, **Instrumental Methods of Chemistry Analysis 4th Edition,** Mc Graw-Hill and Co., New York.
- [38] Liu, S., Ding, Y., Li, P., Diao, K., Tan, X., Lei, F., Zhan, Y., Li, Q., Huang, B., dan Huang, Z., 2014, **Adsorption of the Anionic Dye Congo red from Aqueous Solution onto Natural Zeolites Modified with N,N-dimethyl dehydroabietylamine oxide,** Chemical Engineering Journal vol 248, 135-144.
- [39] Endrayana, R.S., 2017, **Pengaruh Waktu Kontak dan Konsentrasi Cr(VI) terhadap Adsorpsi Cr(VI) dengan Menggunakan Granul Alumino Silico Phosphate (GASP),** Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Malang

- [40] Huheey, P., 1958, **The Strengths of Chemical Bonds**, 2nd Edition, Butterworths, London.
- [41] Stuck, J.W. dan Banwart, W. L., 1979, **Advanced Chemical Methods for Soil and Clay Mineral Research**, D. Reidel Publishing Company, Illinois, USA.
- [42] Nirmala, B., Sudha, A.G., dan Suresh, E., 2013, **Synthesis and Characterization of Alumino Phosphate Zeolits with Tri Ethyl Amine as Template Using Microwave Assisted Technique**, Society of Education., vol. 4, 45–51
- [43] Jannah, M., Armilasari, N., dan Prasetyoko, D., 2014, **Pengaruh HF pada Pembentukan Zeolit ZSM-5 dari Kaolin Bangka Tanpa Template Organik**, J. Sains dan Seni Pomits, vol. 2, no. 1, pp. 1–9
- [44] Ahsan, M.R., Uddin, M.A., dan Mortuza, M.G., 2005, **Infrared Study of The Effect of P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> in the Structure of Lead Silicate Glasses**, vol. 43, pp. 89–99
- [45] Jegatheesan, A., Murugan, J., Neelakantaprasad, B. dan Rajarajan, G., 2012, **FTIR , XRD , SEM, TGA Investigations of Ammonium Dihydrogen Phosphate ( ADP ) Single Crystal**, Int. J. Comput. Appl., vol. 53, no. 4, pp. 53–56
- [46] Nastaj, J., Przewlocka, A., Mysliweic, R., **Biosorption of Ni(II), Pb(II) and Zn(II) on Calcium Alginate Beads: Equilibrium, Kinetic and Mechanism Studies**, Polish Journal of Chemical Technology, 18, 3 , 81-87.
- [47] Kalsi, P.S., 2004, **Spectroscopy of Organic Compounds Sixth Edition**. New Age International (P) Ltd., New Delhi.
- [48] Emelda, L., Putri, S. M. dan Ginting, S., 2013, **Pemanfaatan Zeolit Alam Teraktivasi untuk Adsorpsi Logam Krom (Cr3+)**, J. Rekayasa Kim. dan Lingkungan., vol. 9, pp. 166–172



- [49] Widjajanti, E., Tutik, R., dan Utomo, M., 2011, **Pola Adsorpsi Zeolit Terhadap Pewarna Azo Metil Merah dan Metil Jingga**, Prosiding Seminar Nasional Penelitian, Pendidikan dan Penerapan MIPA, Universitas Negeri Yogyakarta, Yogyakarta.
- [50] Saeed, M., dan Ahmed, M., 2007, **Effect of Temperature on Kinetics and Adsorption Profile of Endothermic Chemisorption Process : -TM(III)-PAN Loades PUF System**, Nuclear Chemistry Division, Pakistan Institute of Nuclear Science and Technology , Islamabad, Pakistan.
- [51] Adamson, A.W., 1990, **Physical Chemistry of Surface**, John Wiley and Sons, New York.

