



Sintesis Katalis Fe/SOD Berbasis Lempung Alam Mareidan untuk Mendegradasi Zat Warna Metilen Biru

(Synthesis of Fe/SOD Catalyst Based on Mareidan Natural Clay to Degrade Methylene Blue Dye)

Elis Damayanti^a, Amir Awaluddin^b, Muhdarina Muhdarina^{b*}

^aProgram Studi Magister Kimia, Pascasarjana, Universitas Riau

^bJurusan Kimia, FMIPA, Universitas Riau
Jalan HR. Subrantas Km. 12,5, Pekanbaru, 28293, Indonesia

*Corresponding author: muhdarina.m@lecturer.unri.ac.id

DOI: 10.20961/alchemy.18.1.47874.122-129

Received 19 January 2021, Accepted 25 April 2021, Published 01 March 2022

Kata kunci:

degradasi;
hematit;
impregnasi;
sodalit;
zat warna.

ABSTRAK. Zeolit merupakan material yang sangat aplikatif yang dapat disintesis dengan bahan baku yang kaya akan silika ataupun alumina. Lempung Mareidan termasuk sumber daya alam Riau yang mengandung silika dan alumina dan telah diubah menjadi zeolit jenis sodalit (SOD). Namun, sodalit yang dihasilkan masih memiliki kristalinitas rendah dan belum diujiaplikasikan. Dalam penelitian ini, SOD disintesis and dilanjutkan dengan impregnasi Fe menggunakan prekursor $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ dan kalsinasi pada 400 °C selama 4 jam. Padatan yang terbentuk dikarakterisasi secara XRD, EDX dan FTIR untuk menentukan struktur, kristalinitas, ukuran kristal, jumlah Fe yang terimpregnasi serta pita vibrasi Fe. Padatan ini diperankan sebagai katalis untuk degradasi zat warna metilen biru. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa material baru yang terbentuk adalah mineral SOD dan hematit. Kristalinitas SOD dan SOD dalam Fe/SOD berturut-turut 49,62% dan 25,49% dengan ukuran kristal masing-masing 52,50 nm dan 4,40 nm. Keberhasilan impregnasi dibuktikan oleh analisis EDX dengan meningkatnya jumlah atom Fe pada Fe/SOD dari 1,46% hingga 22,80% serta munculnya pita vibrasi FeO dan Al-Fe-OH masing-masing pada bilangan gelombang 430 – 470 cm^{-1} dan 3640 – 3660 cm^{-1} berdasarkan analisis FTIR. Katalis Fe/SOD mampu mendegradasi zat warna metilen biru sebanyak 98,80% dalam waktu 10 menit dengan dosis katalis 0,5 gL^{-1} .

Keywords:

degradation;
hematite;
impregnation;
sodalite;
dye.

ABSTRACT. Zeolite is a highly applicable material that can be synthesized using silica or alumina-rich raw materials. Mareidan clay is one of Riau's natural resources, which contains silica and alumina and has been converted to zeolite sodalite (SOD). However, the resulted sodalite still possesses low crystallinity and has not been tested. In this study, SOD was synthesized and was followed by the impregnation of Fe using $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ as a precursor and calcination at 400 °C for 4 hours. The solid formed was characterized by XRD, EDX, and FTIR to determine the structure, crystallinity, crystal size, amount of impregnated Fe, and vibration band of Fe. The solid was then used as the catalyst for methylene blue degradation. The characterization result indicated that the newly formed materials were composed by SOD and hematite. The crystallinity of SOD and SOD in Fe/SOD were 49.62% and 25.49% respectively, with the crystal size of 52.50 nm and 4.40 nm, respectively. The impregnation result was confirmed by EDX analysis marked by the increase of the number of Fe atoms in Fe/SOD from 1.46% to 22.80%, as well as the presence FeO and Al-Fe-OH vibration bands at the wavenumbers of 430 – 470 cm^{-1} and 3640 – 3660 cm^{-1} , respectively, based on FTIR analysis. The Fe/SOD catalyst was able to reduce of methylene blue dye by 98.80% for 10 minutes with the catalyst dose of 0.5 gL^{-1} .

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan mineral kristal alumina silikat berpori terhidrat dengan kation-kation logam alkali atau alkali tanah dan mempunyai struktur kerangka tiga dimensi terbentuk dari tetrahedral (SiO_4)⁴⁻ dan (AlO_4)⁵⁻. Keberadaan kation-kation dapat menetralkan muatan negatif pada kisi (Petrov and Michalev, 2012). Sintesis zeolit umumnya membutuhkan biaya yang mahal. Oleh karena itu, pemanfaatan lempung sebagai bahan dasar zeolit dipandang sebagai alternatif yang sangat efisien karena menggunakan material yang *low cost*. Pada penelitian ini digunakan lempung alam Mareidan yang berasal dari Desa Mareidan, Kecamatan Tualang, Kabupaten Siak,

Cite this as: Damayanti, E., Awaluddin, A., & Muhdarina, M., 2021. Sintesis Katalis Fe/SOD Berbasis Lempung Alam Mareidan untuk Mendegradasi Zat Warna Metilen Biru. *ALCHEMY Jurnal Penelitian Kimia*, 18(1), 122-129. <http://dx.doi.org/10.20961/alchemy.18.1.47874.122-129>.

Provinsi Riau sebagai bahan dasar sintesis zeolit. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa lempung alam Mareidan terdiri dari campuran kaolinit, illit, dan mineral non lempung berupa kuarsa (Zulfikar *et al.*, 2011). Hasil analisis XRF juga menunjukkan bahwa lempung Mareidan mengandung 48,762% Si dan 26,248% Al. Keberadaan mineral kaolinit serta besarnya intensitas Si dan Al yang terkandung dalam lempung alam Mareidan tersebut menjadikannya sebagai bahan baku yang potensial untuk disintesis menjadi zeolit. Sintesis zeolit berbahan dasar lempung juga telah dilakukan oleh Pereira *et al.* (2018) dan Iftitahiyah *et al.* (2018) yang telah menyintesis zeolit dari lempung kaolin untuk mengadsorpsi zat warna kationik dan sebagai alternatif prekursor.

Zeolit merupakan material yang memiliki banyak manfaat, salah satunya adalah sebagai katalis. Struktur kerangka tiga dimensi dari zeolit, rongga yang ada di dalamnya serta luas permukaan yang besar dapat meningkatkan efektivitas zeolit sebagai katalis. Penelitian ini menyintesis zeolit jenis sodalit (SOD). SOD merupakan material tuan rumah (*host molecule*) yang penting untuk menciptakan susunan periodik sederhana dari berbagai jenis zeolit sintesis. SOD bukan hanya penyusun kerangka dari zeolit A (LTA), tetapi merupakan penyusun kerangka pada zeolit yang lain seperti *Hexagonal MFI* (EMT), faujasit (FAU), *Linde Type N* (LTN), *marinellite* (MAR), dan *tschortmerite* (TSC) (Hums, 2017). Zeolit SOD memiliki rumus molekul $[\text{Na}_6(\text{H}_2\text{O})_8] \cdot [\text{Si}_6\text{Al}_6\text{O}_{24}]$.

Jenis zeolit SOD berbasis lempung alam Mareidan telah disintesis oleh peneliti sebelumnya. Akan tetapi, intensitas dan tingkat kristalinitas yang dihasilkan masih cukup rendah yaitu <50%. Secara teoritik rendahnya intensitas dan tingkat kristalinitas zeolit menyebabkan sifat katalisisnya juga rendah sehingga zeolit perlu dimodifikasi terlebih dahulu. Tahapan modifikasi zeolit dengan suatu logam diketahui dapat menunjukkan peningkatan efektivitas. Oleh sebab itu, pada penelitian ini SOD akan dimodifikasi menggunakan bahan pengemban logam aktif berupa ion Fe melalui metode impregnasi, sehingga reaksi yang akan terbentuk berupa reaksi Fenton *like*. Adanya luas permukaan yang besar dari zeolit menunjukkan banyaknya pori yang terdapat pada zeolit sehingga diharapkan akan lebih banyak logam katalis yang dapat diimbangkan. Wu *et al.* (2014) melaporkan penggunaan zeolit 4A yang dimodifikasi dengan nanopartikel besi dan menunjukkan bahwa katalis tersebut memiliki potensi besar sebagai katalis Fenton dan penggunaan bersama H_2O_2 dapat menyebabkan terjadinya degradasi secara efisien.

Metode Fenton merupakan bagian dari metode AOP (*Advanced Oxidation Processes*) yang merupakan metode yang terbukti dapat mengubah senyawa toksik dalam air menjadi substansi yang *biodegradable* seperti CO_2 dan H_2O . Oksidasi pada reaksi Fenton merupakan metode oksidasi yang menggunakan H_2O_2 sebagai pengoksidasinya dan besi sebagai katalis. Keberadaan ion Fe berperan sebagai situs aktif untuk mempercepat dan memperbanyak terbentuknya radikal hidroksil pada proses degradasi (Setyaningtyas *et al.*, 2018). Tanpa adanya tambahan ion Fe ke dalam kerangka zeolit, maka degradasi tidak akan berjalan dengan baik dikarenakan hanya sedikit radikal OH yang terbentuk dan berperan untuk mendegradasi zat warna metilen biru.

Katalis hasil sintesis dalam penelitian ini diaplikasikan untuk mendegradasi zat warna metilen biru. Metilen biru merupakan salah satu pewarna sintetik yang banyak digunakan di industri tekstil. Metilen biru merupakan salah satu senyawa organik aromatis yang sangat stabil dan sulit untuk diuraikan secara alami (Zhuo *et al.*, 2008). Selain itu metilen biru juga merupakan senyawa yang bersifat karsinogenik dan mutagenik, di dalam perairan nilai ambang batas kadar metilen biru yang diperbolehkan sekitar 5 – 10 mg/L (Hidayat, 2008). Oleh sebab itu, perlu dilakukan pengolahan terlebih dahulu terhadap limbah-limbah industri yang mengandung zat warna khususnya zat warna metilen biru.

METODE PENELITIAN

Peralatan sintesis yang digunakan pada penelitian ini yaitu seperangkat alat refluks, labu leher tiga, ayakan ukuran 100 dan 200 *mesh*, *hotplate* (REXIM RSH-IDR L120), *furnace* (Naberthem), pH meter (HORIBA LAQUAact D-71G), *centrifuge* (Dragon LC-045), neraca analitik (ABJ-320-4NM), XRD (PANalytical Empyren), EDX (EDAX Ametek), FTIR (Shimadzu IR Prestige-21), dan seperangkat alat-alat gelas yang digunakan dalam penelitian. Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini yaitu lempung alam desa Mareidan, larutan H_2SO_4 (98%) (Smart-Lab), pelet NaOH (Merck KgAa), $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (Merck), H_2O_2 30% (Merck), zat warna metilen biru (Merck), kertas saring *Whatman 42*, akuades, dan air demineralisasi.

Aktivasi Lempung alam Mareidan (LM)

Lempung Mareidan sebanyak 10 g ditimbang dan dibuat suspensi dengan 100 mL H_2SO_4 3M. Selanjutnya, campuran direfluks pada suhu 80 °C selama 3 jam. Hasil refluks disaring dengan menggunakan kertas saring

Whatman 42, lalu pasta lempung dicuci dengan air demineralisasi hingga mendekati pH 4. Pasta lempung dikeringkan pada suhu 105 °C selama 3 jam dan serbuk lempung yang diperoleh dikalsinasi pada suhu 750 °C selama 3 jam kemudian lempung didinginkan di dalam desikator.

Sintesis Zeolit Sodalit (SOD)

Pada tahap sintesis SOD, dibuat mengacu kepada laporan [Thuadaj dan Mukda \(2016\)](#) dengan memodifikasi beberapa langkah. Serbuk lempung Maredan teraktivasi ditimbang sebanyak 10 g. Lalu dicampur dengan larutan NaOH 5 M sebanyak 50 mL di dalam labu leher tiga. Kemudian, campuran diaduk menggunakan pengaduk magnet pada suhu 80 °C selama 3 jam dengan kecepatan 300 rpm. Campuran yang diperoleh direfluks pada suhu 100 °C selama 8 jam tanpa pengadukan. Hasil refluks yang diperoleh disaring dan dicuci hingga mendekati pH 8 lalu dikeringkan. Tingkat kristalinitas dan ukuran kristal katalis SOD ditentukan dengan instrumen XRD. Hasil analisis XRD diolah dengan software OriginLab versi 2020 menggunakan perbandingan antara intensitas katalis SOD dengan intensitas total sesuai [Persamaan \(1\)](#).

$$\% \text{ Kristalinitas katalis} = \frac{\text{Jumlah intensitas katalis SOD}}{\text{Jumlah intensitas total}} \times 100\% \quad (1)$$

Pembuatan Katalis SOD Terimpregnasi Fe (Fe/SOD)

Pembuatan katalis Fe/SOD dilakukan dengan mengacu pada laporan [Azmi *et al.* \(2016\)](#) dengan memodifikasi beberapa langkah, menggunakan metode impregnasi dari ion Fe³⁺ ke dalam *support* katalis. Pelet Fe(NO₃)₃·9H₂O ditimbang sebanyak 20,2 g dan dilarutkan dengan air demineralisasi, lalu dihomogenkan di dalam labu ukur 250 mL sehingga konsentrasi Fe(NO₃)₃·9H₂O menjadi 0,2 M. Larutan Fe sebanyak 250 mL dimasukkan ke dalam erlenmeyer 500 mL dan diaduk menggunakan pengaduk magnet, kemudian sebanyak 20 g SOD ditambahkan sedikit demi sedikit ke dalam larutan sambil diaduk selama 2 jam. Selanjutnya, larutan dipanaskan di dalam oven pada suhu 80 °C selama 24 jam, lalu disaring menggunakan kertas saring dan dicuci dengan air demineralisasi sebanyak 1 L. Pasta dikeringkan di dalam oven pada suhu 80 °C selama 12 jam dan didinginkan di dalam desikator. Katalis yang diperoleh dikalsinasi pada suhu 400 °C selama 4 jam dan didinginkan di dalam desikator. Katalis yang diperoleh dikarakterisasi menggunakan XRD, EDX, dan FTIR. Tingkat kristalinitas dan ukuran kristal katalis Fe/SOD ditentukan dengan cara yang sama seperti SOD.

Uji Efektivitas Katalis Terhadap Degradasi Metilen Biru

Pengaruh Jenis Katalis terhadap Degradasi Metilen Biru

Larutan metilen biru 50 ppm sebanyak 100 mL dimasukkan ke dalam beaker gelas 250 mL, selanjutnya diaduk dan pH larutan metilen biru diukur menjadi 3 yang disesuaikan dengan penambahan H₂SO₄ 1 M atau NaOH 1 M, kemudian ditambahkan katalis SOD sebanyak 1,25 gL⁻¹. Larutan terus diaduk menggunakan pengaduk magnet selama 30 menit, lalu ditambahkan H₂O₂ 0,67M sebanyak 1 mL sehingga konsentrasi H₂O₂ dalam campuran menjadi 6,7 mM. Pada waktu 10, 20, 30, 40, 60, 80, 100, dan 120 menit dilakukan pengambilan larutan hasil degradasi, selanjutnya disentrifugasi dengan kecepatan 3000 rpm selama 10 menit dan dilakukan pengukuran konsentrasi setelah degradasi berdasarkan absorbansi menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Langkah yang sama juga dilakukan pada katalis Fe/SOD. Perlakuan ini diulang sebanyak 3 kali untuk memperoleh hasil yang optimum. Jenis katalis yang memberikan hasil degradasi optimum akan digunakan pada kondisi parameter berikutnya.

Pengaruh Dosis Katalis terhadap Degradasi Metilen Biru

Larutan metilen biru 50 ppm sebanyak 100 mL dimasukkan ke dalam beaker gelas 250 mL kemudian diaduk menggunakan pengaduk magnet, pH larutan diukur menjadi 3 yang disesuaikan dengan penambahan H₂SO₄ 1 M atau NaOH 1 M. Katalis dengan hasil degradasi optimum ditambahkan sebanyak 1,25 gL⁻¹ ke dalam larutan metilen biru dan pengadukan terus berjalan, setelah 30 menit ditambahkan H₂O₂ 0,67 M sebanyak 1 mL sehingga konsentrasi H₂O₂ dalam campuran menjadi 6,7 mM. Proses degradasi metilen biru berlangsung dan larutan hasil degradasi diambil pada waktu 10, 20, 30, 40, 60, 80, 100, dan 120 menit dengan menggunakan pipet ukur, larutan hasil uji disentrifugasi dengan kecepatan 3000 rpm selama 10 menit, kemudian diukur absorbansi hasil degradasi metilen biru dengan spektrofotometer UV-Vis. Langkah yang sama juga dilakukan untuk variasi dosis katalis 0,25 dan 0,50 gL⁻¹, perlakuan ini diulang sebanyak 3 kali untuk memperoleh hasil optimum.

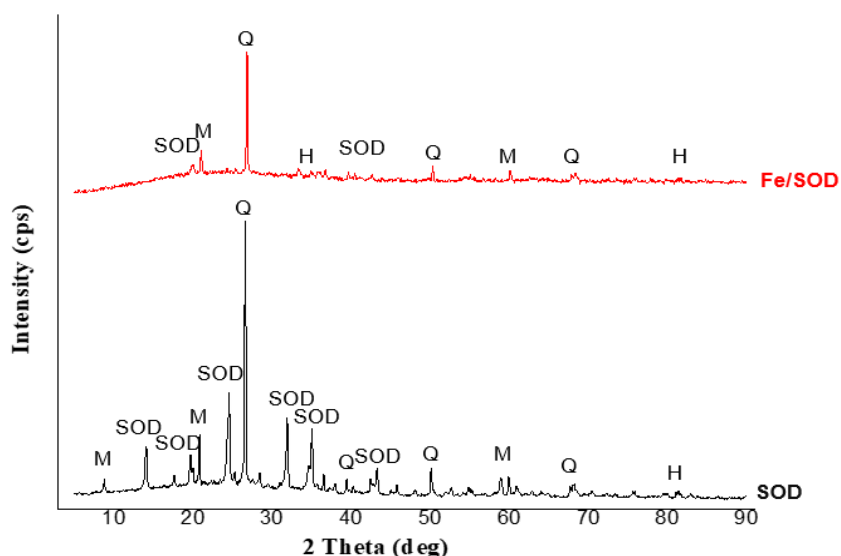
Penentuan Panjang Gelombang Optimum dan Kurva Kalibrasi

Panjang gelombang optimum pewarna metilen biru dari hasil penelitian ini yaitu 660 nm. Panjang gelombang optimum dari larutan metilen biru ini kemudian digunakan untuk pengukuran absorbansi sampel SOD dan Fe/SOD. Kurva kalibrasi dibuat dengan cara memplotkan antara konsentrasi larutan standar dan metilen biru (sumbu X) dengan absorbansi (sumbu Y) pada panjang gelombang optimum 660 nm, kemudian dari kurva kalibrasi ini didapatkan persamaan regresi. Persamaan regresi digunakan untuk menentukan konsentrasi dari larutan metilen biru.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis Jenis Mineral, Kristalinitas dan Ukuran Kristal Menggunakan XRD

Analisis XRD digunakan untuk mengetahui jenis mineral, kristalinitas serta ukuran kristal dari mineral penyusun yang terkandung dalam katalis zeolit. Jenis mineral yang terdapat pada zeolit dapat dilihat pada [Gambar 1](#). Berdasarkan perbandingan posisi sudut difraksi katalis terhadap *Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS) menunjukkan bahwa katalis sebelum impregnasi Fe (SOD) dan katalis setelah impregnasi Fe (Fe/SOD) terdiri dari jenis mineral yang sama yaitu SOD, muskovit, hematit dan mineral nonlempung berupa kuarsa. Akan tetapi, setelah impregnasi Fe intensitas mineral yang mengalami perubahan adalah SOD dan hematit. Jenis mineral penyusun zeolit didominasi oleh SOD yang berada pada 2θ 14,09°; 19,65°; 24,54°; 31,87°; 35,02°; 42,45°; 43,27°; dan 45,75°.



Gambar 1. Difraktogram XRD dari katalis SOD dan Fe/SOD (M = muskovit (JCPDS No. 0001079); SOD = sodalit (JCPDS No. 110401); Q = kuarsa (JCPDS No. 0004266); H = hematit (JCPDS No. 010890597)).

Intensitas puncak-puncak SOD pada katalis yang sudah diimpregnasi ion Fe (Fe/SOD) mengalami penurunan tingkat kristalinitas dari 49,62% menjadi 25,49%. Hal ini menunjukkan adanya substitusi ion Fe ke dalam kerangka SOD sehingga menyebabkan tingkat kristalinitas SOD mengalami penurunan, yang ditandai dengan berkurangnya jumlah puncak-puncak SOD pada katalis Fe/SOD. Hal ini juga terbukti dengan adanya penambahan jumlah mineral hematit (Fe_2O_3) yang terdapat dalam katalis Fe/SOD yaitu pada 2θ 33,11°. Sementara itu, puncak kuarsa belum mengalami penurunan karena mineral kuarsa merupakan kristal tunggal yang sulit untuk dirusak.

Ukuran kristal SOD mengalami penurunan sangat besar dari 52,50 nm menjadi 4,40 nm. Penurunan ini kemungkinan disebabkan oleh adanya cacat kristal saat proses impregnasi ion Fe yang menggunakan pengadukan, akan tetapi cacat kristal umumnya akan dapat meningkatkan sifat katalisis dari zeolit. Selain itu, [Thammavong \(2003\)](#) menyatakan bahwa kecilnya ukuran kristal juga berhubungan dengan harga *full width half maximum* (FWHM). Semakin kecil harga FWHM menunjukkan ukuran kristal yang semakin besar. Tingkat kristalinitas dan ukuran kristal sodalit yang terdapat pada katalis SOD dan Fe/SOD dapat dilihat pada [Tabel 1](#).

Tabel 1. Tingkat kristalinitas dan ukuran kristal katalis SOD dan Fe/SOD.

Sampel	Kristalinitas (%)	Ukuran Kristal (nm)
SOD	49,62	52,50
Fe/SOD	25,49	4,40

Keterangan:

SOD = Sodalit ($[\text{Na}_6(\text{H}_2\text{O})_8] \cdot [\text{Si}_6\text{Al}_6\text{O}_{24}]$)

Analisis Komposisi Unsur Pada Katalis Menggunakan EDX

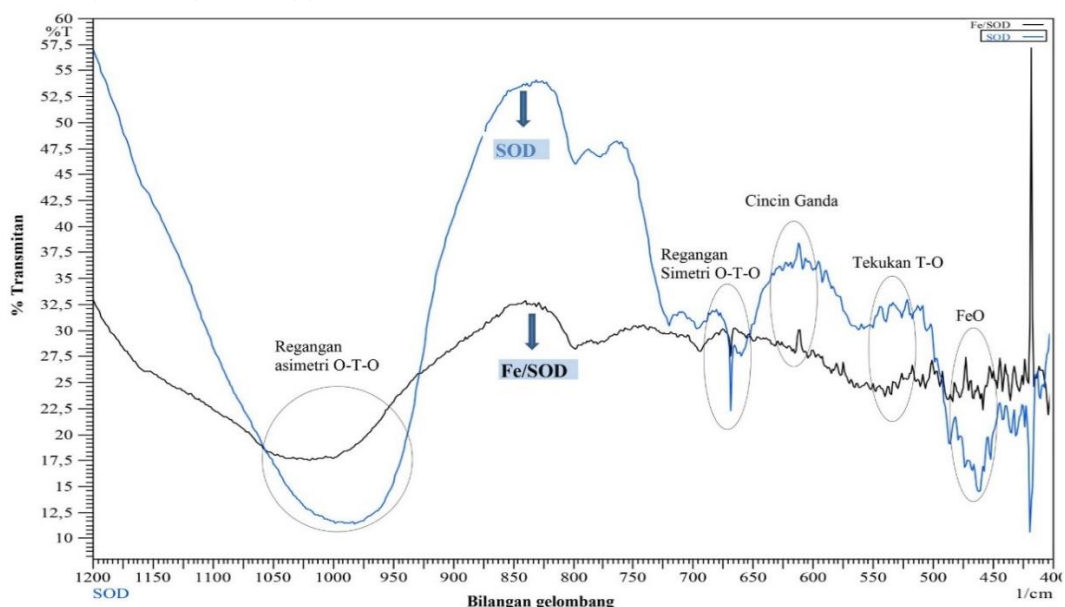
Karakterisasi dengan EDX digunakan untuk mengetahui komposisi unsur-unsur kimia yang terdapat di dalam katalis SOD sebelum dan sesudah dilakukan impregnasi. Pada [Tabel 2](#) menunjukkan persentase berat (wt%) komposisi unsur yang terdapat pada permukaan katalis heterogen. Sebelum impregnasi ion Fe pada katalis SOD terdapat Fe sebesar 1,46% dan setelah diimpregnasi kandungan Fe meningkat tajam hingga mencapai 22,80%, sedangkan unsur Al mengalami penurunan dari 16,50% menjadi 11,18%, sehingga nilai rasio Si/Al nya meningkat dari 1,19 menjadi 1,85. Hal ini mengindikasikan adanya substitusi isomorfis pada kerangka zeolit oleh ion Fe yang menggantikan Al dan membuktikan keberhasilan impregnasi Fe pada katalis SOD.

Tabel 2. Hasil analisis EDX dari katalis SOD dan Fe/SOD.

Jenis Katalis	Komposisi Unsur (wt%)						Rasio Si/Al
	Si	Al	Fe	Na	Mg	K	
SOD	19,60	16,50	1,46	13,49	0,49	1,24	1,19
Fe/SOD	20,71	11,18	22,80	3,51	0,44	1,63	1,85

Adanya pengotor lain seperti logam K pada sampel katalis dibuktikan dengan terdapatnya mineral muskovit pada setiap sampel sebesar 1,24% pada SOD dan 1,63% pada Fe/SOD. Keberadaan muskovit dibuktikan oleh hasil analisis XRD pada 2θ 8,78°, 20,85°, dan 60,90°.

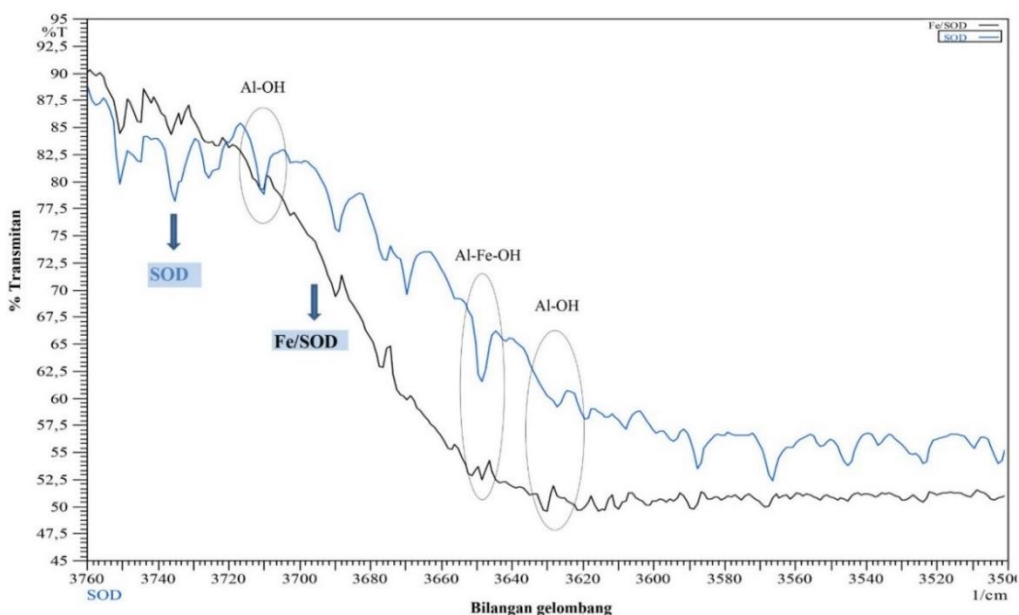
Identifikasi Gugus Fungsi Menggunakan FTIR

**Gambar 2.** Spektra IR dari katalis SOD dan Fe/SOD pada bilangan gelombang 400 – 1200 cm^{-1} .

Analisis FTIR bertujuan untuk mengetahui gugus fungsi dan jenis vibrasi yang terdapat pada zeolit sebelum dan setelah impregnasi. Hasil spektra IR katalis SOD dan Fe/SOD ditunjukkan pada [Gambar 2](#) dan [Gambar 3](#). Karakterisasi FTIR dilakukan pada rentang bilangan gelombang 400 – 1200 cm^{-1} dan 3580 – 3760 cm^{-1} . Pita serapan pada daerah antara 500 – 420 cm^{-1} merupakan serapan vibrasi tekuk Si–O dan Al–O. Pada daerah bilangan gelombang 1250 – 950 cm^{-1} menunjukkan serapan vibrasi regangan asimetris internal O–Si–O atau O–Al–O. Panjang ikatan Al–O lebih besar daripada Si–O, sehingga pita-pita serapan ini akan cenderung bergeser kearah

bilangan gelombang yang kecil. Selain itu, kekuatan ikatan Al–O lebih lemah menyebabkan lebih mudah terjadi vibrasi sehingga pita serapan akan muncul pada daerah bilangan gelombang yang lebih kecil (Sunardi *et al.*, 2007). Pada bilangan gelombang 500 – 650 cm^{-1} menunjukkan pita serapan cincin ganda. Cincin ganda merupakan karakter kerangka zeolit pada jaringan eksternal antara lapisan zeolit satu dengan yang lainnya.

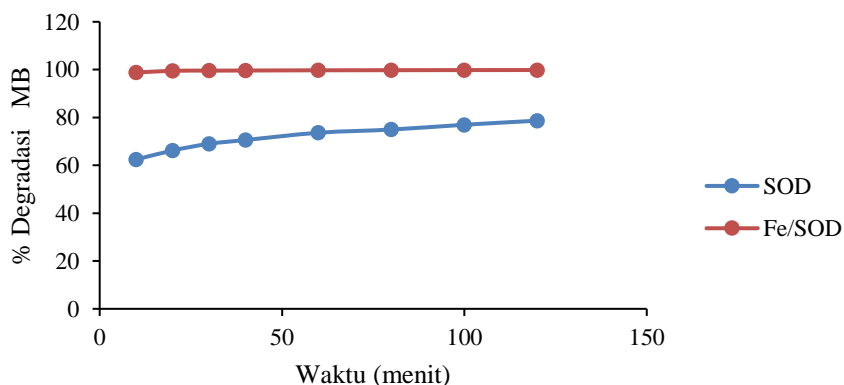
Ikatan Al–M–OH (M = Fe, Si, Mg) terdapat pada bilangan gelombang 3620 – 3650 cm^{-1} (Ialips *et al.*, 2002). Pita serapan pada bilangan gelombang 3650,44 cm^{-1} hanya ditemukan pada katalis Fe/SOD yang menunjukkan ikatan Al–Fe–OH. Hasil ini menunjukkan kemungkinan Fe yang diimpregnasi telah masuk ke dalam kerangka zeolit. Fe di permukaan katalis ditunjukkan oleh adanya pita serapan FeO pada daerah *finger print* dengan bilangan gelombang 450,40 cm^{-1} .



Gambar 3. Spektra IR dari katalis SOD dan Fe/SOD pada bilangan gelombang 3580 – 3760 cm^{-1} .

Hasil Degradasi Zat Warna Metilen Biru Pengaruh Jenis Katalis Terhadap Degradasi Metilen Biru

Uji efektivitas katalis dengan tiga kali pengulangan memperoleh data hasil degradasi seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Persen degradasi metilen biru berdasarkan variasi jenis katalis dengan kondisi [MB] = 50 ppm, [SOD dan Fe/SOD] = 1,25 g/L, pH = 3, [H₂O₂] = 0,67 M pada suhu ruang.

Pada Gambar 4 degradasi metilen biru terjadi sebesar 97,95% dengan menggunakan katalis Fe/SOD pada waktu 10 menit. Jenis katalis heterogen yang berbeda memberikan situs aktif dan kemampuan adsorpsi yang berbeda, hal ini menunjukkan perbedaan efisiensi degradasi metilen biru. Adanya ion Fe pada kerangka zeolit

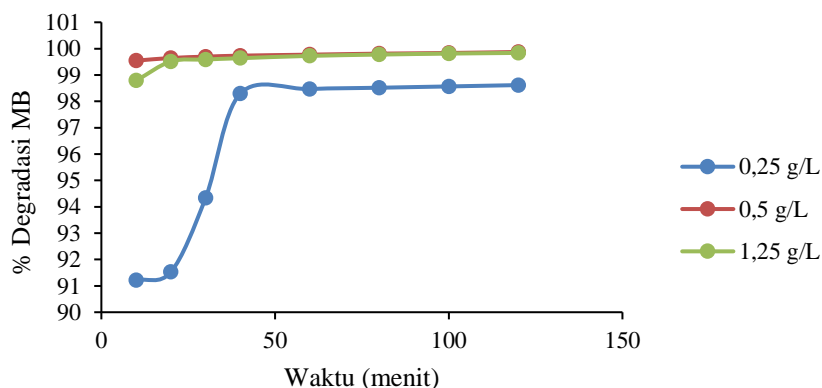
sodalit menyebabkan peningkatan situs aktif yang berperan untuk mempercepat dan memperbanyak proses reduksi H_2O_2 menjadi radikal OH yang sangat reaktif (Setyaningtyas *et al.*, 2018).

Radikal OH merupakan oksidator kuat yang akan mengurai zat warna atau polutan organik menjadi senyawa yang lebih sederhana seperti karbon dioksida dan air melalui metode Fenton *like* (Herney-ramirez *et al.*, 2010) dengan besi sebagai katalis dan zeolit sodalit sebagai *support* katalis. Sebagaimana dilaporkan oleh Taghvaei *et al.* (2017) yang mendegradasi metilen biru menggunakan Fe_2O_3 dan TiO_2 yang *disupport* pada zeolit alam dan menunjukkan efisiensi degradasi zat warna mencapai 92% pada kondisi optimum.

Keberadaan ion Fe juga dibuktikan oleh adanya peningkatan komposisi unsur Fe pada katalis Fe/SOD dari 1,46% menjadi 22,80% setelah diimpregnasi berdasarkan analisis EDX. Adanya unsur hematit berdasarkan analisis XRD pada Gambar 1 juga menunjukkan bahwa ion Fe telah berhasil diimpregnasi ke dalam kerangka SOD. Adanya ion Fe menjadi situs aktif yang berperan sebagai reduktor H_2O_2 pada proses degradasi metilen biru ini. Hal ini yang menyebabkan pada waktu 10 menit telah terjadi degradasi sebesar 97,95% oleh katalis Fe/SOD dibandingkan katalis SOD sebesar 62,43% dikarenakan kurangnya situs aktif pada katalis SOD tersebut.

Pengaruh Dosis Katalis Terhadap Degradasi Metilen Biru

Dosis katalis merupakan salah satu faktor penting yang berpengaruh terhadap tingkat keberhasilan proses degradasi zat warna. Pada penelitian ini digunakan 3 variasi dosis katalis antara lain 0,25 ; 0,5; dan 1,25 g/L^{-1} dengan menggunakan katalis Fe/SOD yang merupakan katalis terbaik pada tahapan sebelumnya. Persentase hasil degradasi dapat dilihat pada Gambar 5.



Gambar 5. Persen degradasi metilen biru berdasarkan variasi dosis katalis dengan kondisi [MB] = 50 ppm, [Fe/SOD] = 0,25 ; 0,5 dan 1,25 g/L^{-1} , pH = 3, [H_2O_2] = 0,67 M pada suhu ruang.

Dosis katalis yang digunakan berpengaruh terhadap proses reduksi H_2O_2 menjadi radikal OH pada pH larutan tertentu (Nidheesh and Gandhimathi, 2013). Katalis memiliki peranan penting dalam proses degradasi metilen biru, karena tanpa adanya katalis, kekuatan oksidasi H_2O_2 tidak cukup untuk mendegradasi senyawa organik. Berdasarkan Gambar 5 dapat diketahui bahwa katalis dengan konsentrasi 0,5 g/L^{-1} menunjukkan hasil degradasi yang optimum yaitu sebesar 98,80% pada waktu 10 menit.

Pembentukan radikal OH berbanding lurus dengan konsentrasi katalis (Nidheesh and Gandhimathi, 2013). Semakin banyak konsentrasi katalis maka situs aktif atau jumlah ion Fe yang akan bertindak untuk dekomposisi H_2O_2 akan semakin banyak, sehingga dapat meningkatkan laju degradasi metilen biru. Akan tetapi, kelebihan konsentrasi katalis dari jumlah optimumnya akan mengurangi laju degradasi metilen biru karena ion Fe akan bereaksi dengan radikal OH sehingga jumlah radikal OH berkurang untuk degradasi metilen biru (Wang, 2008).

KESIMPULAN

Zeolit sodalit (SOD) telah berhasil disintesis dan dimodifikasi menggunakan ion Fe dengan tujuan meningkatkan efektivitasnya sebagai katalis pendegradasi zat warna metilen biru. Hasil sintesis katalis setelah impregnasi ion Fe menghasilkan mineral SOD dan hematit. SOD memiliki tingkat kristalinitas sebesar 49,62% dan ukuran kristal 52,50 nm, proses impregnasi dengan ion Fe menyebabkan tingkat kristalinitas menurun menjadi 25,49% dengan ukuran kristal 4,40 nm. Berdasarkan analisis EDX, peningkatan komposisi unsur Fe terjadi dari 1,46% menjadi 22,80%. Penurunan tingkat kristalinitas, ukuran kristal serta peningkatan komposisi unsur Fe pada

katalis SOD setelah diimpregnasi menunjukkan keberhasilan proses impregnasi ion Fe ke dalam katalis SOD. Hal ini juga ditunjukkan pada hasil analisis FTIR pada bilangan gelombang 430 – 470 cm^{-1} yang merupakan pita vibrasi FeO dan 3640 – 3660 cm^{-1} yang merupakan vibrasi dari ikatan Al–Fe–OH. Adanya ion Fe pada katalis dapat meningkatkan persen degradasi zat warna, sehingga diperoleh degradasi optimum sebesar 98,80% oleh katalis Fe/SOD dengan dosis katalis 0,5 gL^{-1} .

DAFTAR PUSTAKA

- Azmi, N. H. M., Ayodele, O. B., Vadivelu, V. M., Asif, M., and Hameed, B. H., 2014. Fe-Modified Local Clay As Effective and Reusable Heterogeneous Photo-Fenton Catalyst for The Decolorization of Acid Green 25. *Journal of The Taiwan Institute of Chemical Engineers* 863 (9). doi: 10.1016/j.jtice.2014.03.002.
- Herney-ramirez, J., Vicente, M. A., and Madeira, L. M., 2010. Heterogeneous Photo-Fenton Oxidation With Pillared Clay-Based Catalysts for Wastewater Treatment : A Review. *Applied Catalysis B Environmental* 98 (1–2), 10–26. doi: 10.1016/j.apcatb.2010.05.004.
- Hidayat, W., 2008. *Teknologi Pengolahan Air Limbah*, Majari Magazine, Jakarta.
- Hums, E., 2017. Synthesis Of Phase-Pure Zeolite Sodalite From Clear Solution Extracted From Coal Fly Ash. *Journal of Thermodynamic & Catalysis* 8 (2), 187.
- Ialips, C.L.S.F., Uo, D.O.H., An, L.A.Y., Un, J.W.U., and Tucki, J.O.W.S., 2002. Effect of Oxidation State on The IR Spectra of Garfield Nontronite. *American Mineralogist*, 87, 630–641. doi: 10.2138/am-2002-5-605.
- Iftitahiyah, V.N., Prasetyoko, D., Nur, H., Bahruji, H., and Hartati., 2018. Synthesis and Characterization of Zeolite Nax From Bangka Belitung Kaolin As Alternative Precursor. *Malaysian Journal of Fundamental and Applied Sciences* 14 (4), 414–418.
- Nidheesh, P.V. and Gandhimathi, R., 2013. Degradation of Dye From Aqueous Solution By Fenton Processes : A Review. *Environmental Science and Pollution Research*, 1–34. doi: 10.1007/s11356-012-1385-z.
- Pereira, P. M., Ferreira, B. F., Oliveira, N. P., Nassar, E. J., Ciuffi, K. J., Vicente, M. A., Trujillano, R., Rives, V., Gil, A., Korili, S., and Faria, E. H., 2018. Synthesis of Zeolite A from Metakaolin and Its Application in the Adsorption of Cationic Dyes. *Applied Science* 8, 608. doi: 10.3390/app8040608.
- Petrov, I. and Michalev, T., 2012. Synthesis of Zeolite A : A Review. *НАУЧНИ ТРУДОВЕ НА РУСЕНСКИЯ УНИВЕРСИТЕТ* (2), 30–35.
- Setyaningtyas, T., Riyani, K., Dwiasi, D. W., and Rahayu, E. B., 2018. Degradasi Fenol pada Limbah Cair Batik Menggunakan Reagen Fenton Dengan Sinar UV. *Jurnal Kimia VALENSI: Jurnal Penelitian dan Pengembangan Ilmu Kimia* 4 (1), 26–33. doi: 10.15408/jkv.v4i1.7054.
- Sunardi, Rohman, T., Mikrianto, E., and Rusmayanthi, R., 2007. Pengaruh Waktu Refluks dengan NaOH Terhadap Konversi Abu Layang Batubara Menjadi Zeolit. *Sains dan Terapan Kimia* 1 (2), 1–8. doi: 10.20527/jstk.v1i2.2010.
- Taghvaei, H., Farhadian, M., Davari, N., and Maazi, S., 2017. Preparation, Characterization And Photocatalytic Degradation of Methylene Blue By Fe³⁺ Doped TiO₂ Supported On Natural Zeolite Using Response Surface Methodology. *Advances in Environmental Technology* 4, 205–216. doi: 10.22104/aet.2018.2462.1124.
- Thammavong, S., 2003. Studies of Synthesis, Kinetics and Particle Size of Zeolite X From Narathiwat Kaolin. *Tesis*. Suranaree: Degree of Master of Science in Chemistry, Suranaree Universty of Technology.
- Thuadaj, P. and Mukda, P., 2016. Synthesis And Characterization Of Zeolite Derived From Buriram Sugarcane Bagasse Ash and Narathiwat Kaolinite. *SNRU Journal of Science and Technology* 8 (3), 320–326.
- Wang, S., 2008. Comparative Study of Fenton-like Reaction Kinetics In Decolourisation of Wastewater. *Dye and Pigment* 76, 714–720. doi: 10.1016/j.dyepig.2007.01.012.
- Wu, Y., Yang, M., Hu, S., Wang, L., and Yao, H., 2014. Characteristics And Mechanisms of 4A Zeolite Supported Nanoparticulate Zero-Valent Iron As Fenton-Like Catalyst To Degrade Methylene Blue. *Toxicological & Environmental Chemistry* 96 (2), 227–242. doi: 10.1080/02772248.2014.931960.
- Zhuo, Q., Ma, H., Wang, B., and Fan, F., 2008. Degradation of Methylene Blue : Optimization of Operating Condition Through A Statistical Technique and Environmental Estimate of The Treated Wastewater. *Journal of Hazardous Materials* 153, 44–51. doi: 10.1016/j.jhazmat.2007.08.017.
- Zulfikar, Z., Martua, R. P., and Ganjar, L., 2011. Inventarisasi Mineral Non Logam di Kabupaten Siak Provinsi Riau. In : *Prosiding Hasil Kegiatan Pusat Sumber Daya Geologi Tahun 2011*, Siak.