

Pemanfaatan Limbah Abu Terbang (*Fly Ash*) Batu Bara Sebagai Bahan Campuran Beton Geopolimer

Julharmito¹⁾, Ahmad Fadli²⁾ dan Drastinawati²⁾

¹ Mahasiswa Program Studi Teknik Kimia, ² Dosen Jurusan Teknik Kimia

Laboratorium Konversi Elektrokimia

Fakultas Teknik, Universitas Riau

Kampus Binawidya Km 12,5 Simpang Baru Panam, Pekanbaru 28293

Julhar91@gmail.com

ABSTRACT

Fly ash can be used in the manufacture of concrete geopolimer. The replacement of the use of cement with fly ash can reduce the cost of manufacture of concrete and can reduce global warming posed from the production of cement. This research aims to know the influence of the use of fly ash, variations in concentrations of KOH and Na₂SiO₃/KOH ratio relationships against the concrete compressive strength of concrete geopolimer and test the level of immobilisasi of heavy metals contained in concrete geopolimer. Geopolimer synthesized from fly ash using a mixed solution of KOH and Na₂SiO₃. The solution is prepared the day before use. Initially prepared a solution of KOH with concentrations of 8 M, 10 M, 12 M, 15 M and Na₂SiO₃/KOH ratio 0.8; 1.2; 1.6; 2.0. These materials are mixed while stirring and inserted into the mold cylinder diameter 4 cm height 8 cm. Batter the already hardened issued and in the dry at a temperature of 80°C for 24 hours, then the samples were dried at room temperature for 21 days, then performed a test of strong press, porosity and heavy metal content. Test result showed a strong increase with added press Molarity KOH and Na₂SiO₃/KOH ratio, strongly press the highest 30.26 MPa produced on the molar ratio of 14 m and Na₂SiO₃ KOH/KOH 2.0. Instead, the porosity obtained decreased with increasing molar NaOH and KOH Na₂SiO₃/ratio. The lowest porosity 6.49% obtained in Molarity KOH 14 and Na₂SiO₃/KOH ratio is 2.0. Concrete geopolimer able to immobilize heavy metals found in the fly ash with either. Metal Pb reduced from 8,954 mg/L be 0.66 mg/L, the metal Cr reduced from 6,978 mg/L be 2.096 mg/L, Cu Metal reduced from 12.355 mg/L be 7.350 mg/l. so as to meet the Government Regulation Number 101 by 2014.

Key word: geopolimer concrete, fly ash, activator solution

1. Pendahuluan

Pembangunan konstruksi bangunan di Indonesia telah berkembang dengan pesat seiring dengan semakin bertambahnya jumlah penduduk, terutama di kota-kota besar yang mengakibatkan meningkatnya kebutuhan terhadap sarana dan prasarana, khususnya bangunan rumah dan gedung. Pada umumnya sebagian besar sarana dan prasarana (infrastruktur) yang ada menggunakan konstruksi beton, dimana teknologinya telah dapat dikuasai oleh seluruh lapisan masyarakat dari tingkat bawah hingga tingkat atas. Beton masih dapat memenuhi kebutuhan untuk pembangunan konstruksi dan secara

keseluruhan konstruksi beton masih dianggap lebih murah dibandingkan dengan konstruksi lainnya. Adapun bahan alternatif yang dapat digunakan untuk pembuatan beton adalah dengan menggunakan abu terbang atau *pulverised fly ash* (PFA) sebagai pengganti semen (*cementitious*) pada pembuatan beton. Penggantian penggunaan semen dengan *fly ash* dapat mengurangi biaya pembuatan beton serta dapat mengurangi pemanasan global yang ditimbulkan dari produksi semen karena produksi semen Portland selama ini melepaskan gas CO₂ ke asmofer bumi, dimana gas CO₂ memberikan sumbangan terbesar dalam pemanasan global. *Fly ash* mengandung

beberapa logam berat yang sangat berbahaya bagi lingkungan. Logam-logam berat yang terdapat dalam abu layang adalah Fe, Mn, Zn, Cr dan Cd. Logam-logam berat ini akan terurai kelingkungan jika tidak dilakukan pengolahan lebih lanjut sehingga perlu dicarikan alternatif baru pemanfaatan limbah abu layang agar tidak berbahaya terhadap lingkungan. Salah satu cara yang telah diperkenalkan para peneliti untuk mereduksi peran bahaya logam berat tersebut adalah dengan mengkonversi abu layang ke bentuk material lain yang disebut beton geopolimer. Beton geopolimer adalah bahan yang relatif baru dalam sejarah pengembangan bahan konstruksi dan masih tetap menarik untuk diteliti sifat-sifat kimia, fisika dan mekaniknya [Van Jaarsveld dkk, 2002]. Pengolahan abu layang menjadi beton geopolimer melalui proses geopolimerisasi melibatkan proses aktivasi abu layang sehingga menjadi lebih reaktif dan dapat mengikuti tahap-tahap proses polimerisasi. Logam-logam berat akan tertahan didalam matriks beton geopolimer. Telah dilaporkan bahwa kation logam berat dalam beton geopolimer dapat mempengaruhi sifat-sifat kimia dan fisika dari beton geopolimer, sedangkan konsentrasi dari larutan alkali sebagai aktivator dapat mempengaruhi dalam pembuatan beton geopolimer [Parthiban K dkk,2014].

Beton geopolimer ini terbentuk dengan melarutkan unsur silika dan alumina yang terkandung dalam abu layang dengan larutan yang bersifat alkalis yang disebut larutan alkalin. Larutan alkalin yang digunakan adalah campuran antara kalium hidroksida (KOH), natrium silikat (Na_2SiO_3) dan air distilat (H_2O), yang masing-masing komponen memiliki peran penting dalam sintesis. Sintesis ini didasari oleh reaksi polikondensasi dari material yang mengandung silikaaluminat dan alumina-silikat. Sintesis beton geopolimer sangat tergantung pada kondisi bahan awal, yaitu sifat dan komposisi abu layang, konsentrasi larutan alkalin dan proses geopolimerisasinya [Van Jaarsveld dkk, 2002].

Penelitian sebelumnya yang telah dilakukan tentang pembuatan beton geopolimer diantaranya adalah oleh Samadi

T,W (2013), yang membuat pasta geopolimer dari *fly ash* PLTU Paiton dan metakaolin dengan alkali berupa kalium hidroksida (KOH). Pada penelitian ini digunakan molaritas larutan kalium hidroksida 10 M dengan perbandingan massa larutan natrium silikat terhadap kalium hidroksida adalah 2,8 untuk *fly ash* dan 1,2 untuk metakaolin. Dari serangkaian pengujian yang dilakukan pada rentang suhu dari 60 dan 80 °C diperoleh kuat tekan optimal 50,08 Mpa pada temperatur 80 °C. Subekti (2012) membuat pasta geopolimer dari *fly ash* PLTU Paiton dan limbah Tjiwi Kimia. Pada penelitian ini digunakan molaritas larutan natrium hidroksida 8 M dan 12 M dengan perbandingan massa larutan natrium silikat terhadap natrium hidroksida adalah 0,5. Dari serangkaian pengujian yang dilakukan pada rentang waktu 3 hari, 7 hari, 14 hari, 21 hari, 56 hari maka diperoleh kuat tekan optimal pada perbandingan massa *fly ash* Paiton terhadap limbah Tjiwi Kimia 0 % : 100 % dengan kuat tekan sebesar 14,39 MPa, kemudian Yuanda D,dkk (2015) melakukan penelitian pembuatan *fly ash* dari PLTU Paiton dengan Variasi konsentrasi NaOH 8M, 10M, 12M, 14M dan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ 0,8, 1,2, 1,6, dan 2,0. Kuat tekan tertinggi diperoleh 7,56 MPa pada konsentrasi NaOH 14M dan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ 2,0. Penelitian pemanfaatan limbah abu terbang batubara (*fly ash*) sebagai bahan campuran beton geopolimer ini bertujuan Untuk mengetahui pengaruh penggunaan abu terbang (*fly ash*) dan variasi konsentrasi KOH serta rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ terhadap kekuatan tekan beton beton geopolimer selain itu juga untuk mengetahui kandungan logam pada beton geopolimer yg diperoleh dengan alat AAS.

2. Metodologi Penelitian

2.1 Bahan

Bahan yang digunakan adalah abu terbang (*fly ash*) dari PLTU Paiton, Kalium hidroksida [KOH] (Merck,Germany), natrium silikat [Na_2SiO_3] (Merck, Germany), asam nitrat [HNO_3](Merck, Germany),aquades

2.2 Alat

Alat yang akan diperlukan pada penelitian ini adalah Timbangan Analitik,

Corong, Ayakan , Hot Plate, Gelas ukur, Ember, Saringan fiber glass, Pengaduk, Gelas piala, Oven, gelas ukur Labu takar, Cetakan Geopolimer berbentuk silinder, Alat *Press Concrete Compressive Strength* untuk menguji kuat tekan, AAS (*Atomic Absorbtion Spectrofotometer*).

2.3 Variabel Penelitian

Variabel penelitian meliputi variabel tetap dan berubah. Variabel tetap penelitian ini adalah Ukuran beton geopolimer diameter 4 cm dan tinggi 8 cm berbentuk silinder, Perbandingan massa *fly ash* dan aktivator dalam binder : 70 % : 30 %. Variasi waktu pengerasan geopolimer 21 hari. Curing time pada suhu 80⁰C

Sedangkan yang menjadi variabel peubah adalah Konsentrasi KOH : 8M, 10M, 12M , 14M dan Perbandingan NaSiO₃/ KOH : 0,8, 1,2, 1,6, dan 2,0.

2.4 Cara Kerja

Sebelum pembuatan beton geopolimer dilakukan, semua bahan yang akan digunakan disiapkan terlebih dahulu. Untuk larutan activator disiapkan sehari sebelum proses pencampuran.

Proses pencampuran diawali dengan mencampurkan *fly ash* yang telah disaring dengan komposisi yang telah ditetapkan dengan larutan aktivator yang telah dipersiapkan sehari sebelumnya, kemudian dicampur kedalam ember. Setelah itu adonan yang terbentuk diaduk dengan menggunakan pengaduk hingga adonan menjadi rata. Lumuri cetakan dengan oli agar adonan yang dihasilkan tidak lengket dicetakan pada saat dibuka. Masukkan adonan beton geopolimer yang telah rata tersebut kedalam *bekisting* berbentuk silinder diameter 4 cm tinggi 8 cm. Adonan dipadatkan agar campuran mengisi seluruh cetakan dengan cara digetarkan, setelah rata ditutup rapat kemudian dioven dengan suhu 80 ⁰C selama 24 jam. Setelah 24 jam adonan mengeras dan dilepas dari cetakan dan dimasukkan dalam tempat plastik tertutup selama 3 hari, kemudian tutupnya dibuka dan dibiarkan dalam suhu kamar sampai tiba waktu pengetestan (21 hari). Dengan langkah

pengerjaan yang sama dapat dibuat geopolimer dengan komposisi-komposisi yang lain.

Beton geopolimer yang diperoleh akan dilakukan uji berupa porositas, kuat tekan dan kandungan logam berat.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Hasil Analisis Kandungan Logam Berat Limbah *Fly Ash* Batubara.

Uji logam berat pada *fly ash* dan beton geopolimer bertujuan untuk menentukan kation logam Cu,Cr,Pb yang mampu terikat pada saat sintesis geopolimer yang berasal dari *fly ash* yang mengandung beberapa logam berat. Ini dilakukan untuk melihat kekuatan amobilisasi geopolimer pada kation logam berat dalam suasana asam yang diharapkan dapat mendekati kondisi di alam dengan menggunakan alat AAS (*Atomic Absorbtion Spectrofotometer*). Hasil analisis terhadap *fly ash* batubara diperoleh hasil seperti pada tabel berikut.

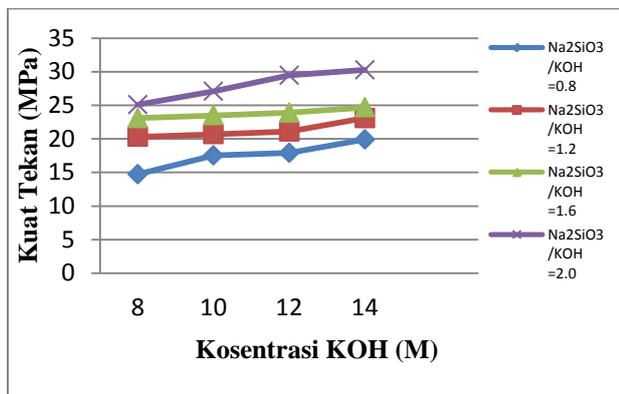
Tabel 1. Hasil Pengujian Kandungan Logam Berat Pada *Fly Ash*

Nama Logam	Hasil Analisa <i>fly ash</i> (mg/L)	Standar PP (mg/L)
Pb	8,954	0.5
Cu	12,355	10
Cr	6,978	2.5

Dari tabel 1 diatas memperlihatkan bahwa hasil uji kandungan logam berat pada abu terbang (*fly ash*) yang digunakan masih diatas ambang batas baku mutu TCLP zat pencemar dalam limbah dan termasuk dalam kategori limbah B3 karena dari beberapa parameter logam berat diatas seperti Pb, Cu dan Cr masih melebihi standar baku mutu PP No.101 Tahun 2014. Sehingga limbah abu terbang batubara ini perlu dilakukan pengolahan lebih lanjut agar penggunaannya aman bagi lingkungan yakni melalui teknik solidifikasi (pemadatan) yang dianjurkan oleh peraturan pemerintah diatas.

3.2 Hubungan Kuat Tekan Terhadap Konsentrasi KOH dan Rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$

Kekuatan tekan beton akan bertambah dengan naiknya umur beton. Kekuatan beton akan naik secara linier pada minggu yang keempat dari waktu pengeringan. Walaupun pada kasus tertentu kekuatan tekan beton akan terus bertambah sampai beberapa bulan kemudian (Helmut R.A,1978). Kekuatan tekan adalah kemampuan produk beton geopolimer untuk menerima gaya tekan persatuan luas, sehingga kuat tekan tersebut mengidentifikasi mutu produk suatu beton geopolimer. Semakin tinggi nilai kuat tekan suatu produk beton geopolimer maka akan semakin tinggi pulan mutu produk beton geopolimer tersebut. Kuat tekan pada penelitian ini diuji pada waktu pengeringan 21 hari. Hubungan kuat tekan beton geopolimer terhadap konsentrasi KOH yang dipergunakan bisa dilihat seperti gambar 1 berikut.

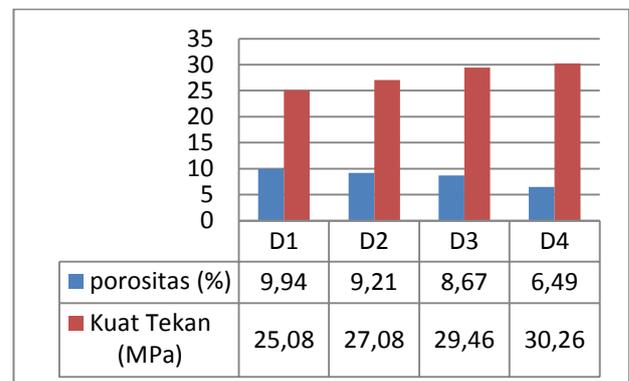


Gambar 1. Hubungan Kuat Tekan Beton Geopolimer Terhadap Konsentrasi KOH & Rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$

Dari gambar 1 diatas dapat dilihat bahwa kuat tekan beton geopolimer naik dengan bertambahnya molaritas larutan KOH dan kenaikan rasio perbandingan $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$. Kekuatan tekan tertinggi dihasilkan pada beton geopolimer dengan molaritas 14M dan perbandingan $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ 2.0 sebesar 30.26 Mpa. Ini menunjukkan penggunaan KOH sebagai alkali aktivator menghasilkan kuat tekan yang lebih baik. Pada gambar 1 diatas

juga terlihat bahwa kenaikan kuat tekan disebabkan oleh naiknya molaritas yang digunakan dalam campuran sehingga berdampak terhadap pengikatan beton geopolimer yang berlangsung relatif lebih cepat. Oleh karena itu, reaksi geopolimerisasi dapat terus berlangsung selama masa penyimpanan pada beton geopolimer dengan konsentrasi KOH lebih besar. Selain hal diatas hal ini juga tidak terlepas dari penggunaan KOH sebagai larutan activator yang dapat meningkatkan kuat tekan beton geopolimer lebih baik jika dibandingkan dengan larutan activator NaOH. Kekuatan basa KOH yang lebih dari pada NaOH memungkinkan activator ini untuk bereaksi lebih cepat dengan padatan aluminosilikat (Phair dan van Deventer,2001). Disamping keunggulan ini, jari-jari ionic K^+ lebih besar dari Na^+ sehingga cenderung menyebabkan terbentuknya oligomer-oligomer silikat yang berukuran lebih besar dalam fasa gel geopolimer, yang meningkatkan derajat ikatan silang dalam produk beton geopolimer (Phair dan van Deventer ,2002).

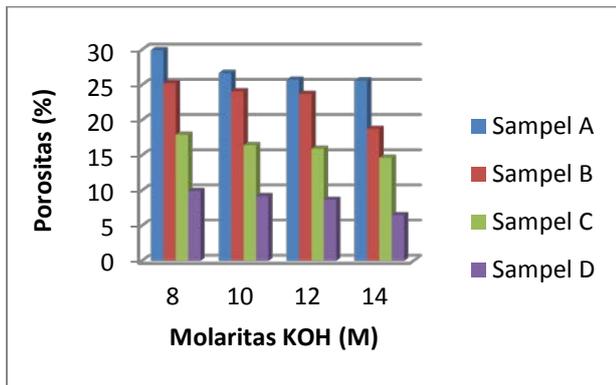
3.3. Hubungan Porositas Terhadap Kuat Tekan Beton Geopolimer dan Molaritas KOH.



Gambar 2. Hubungan Porositas Terhadap Kuat Tekan Beton Geopolimer

Dari gambar diatas terlihat bahwa porositas berbanding terbalik terhadap kuat tekan beton geopolimer. Pada saat nilai porositas tinggi maka akan menghasilkan kuat tekan yang relative lebih rendah . Pada sampel D4 porositas yang diperoleh adalah 6.49 % dan kuat tekan yang diperoleh adalah 30.26 MPa.

Hubungan porositas terhadap molaritas KOH adalah sebagai berikut.



Gambar 3. Hubungan Antara Porositas Terhadap Molaritas KOH.

Secara keseluruhan dapat dilihat bahwa peningkatan molaritas KOH akan memperkecil porositas. Hal terjadi karena beton geopolimer lebih cepat mengeras seiring naiknya konsentrasi KOH, sehingga tidak tersedianya cukup waktu untuk pembentukan pori-pori pada bagian dalam beton geopolimer. Jika dibandingkan dengan penelitian Yuanda dkk (2015) porositas yang dihasilkan pada penelitian ini relative lebih kecil pada konsentrasi dan rasio yang sama. Pada sampel D1(KOH 8M) dan D2(KOH10M) pada penelitian ini porositas yang dihasilkan adalah 9.94 dan 9.21 %. Sedangkan pada sampel yang sama Yuanda dkk (2015) menghasilkan porositas yang lebih besar seperti pada pada sampel D1 (NaOH 8M) 21.23 % dan D2 (NaOH 10M) 14.77 %. Hal ini menunjukkan bahwa penggunaan KOH dapat memberikan porositas yang kecil karena kemampuan yang lebih baik dalam mengikat partikel abu terbang sehingga ruang kosong antara matrik tidak banyak terdapat, sehingga hal ini juga berpengaruh pada kuat tekan yang dihasilkan dengan nilai yang lebih tinggi. Kombinasi KOH dan Na_2SiO_3 dapat menghasilkan kuat tekan dan porositas yang lebih baik jika dibandingkan penggunaan NaOH. Disamping itu KOH juga berperan dalam mengikat atom Si dan Al pada abu terbang membentuk ikatan yang padat dan kuat sehingga celah yang tersedia semakin sedikit

3.4 Hasil Analisis Kandungan Logam Berat pada Beton Geopolimer

Analisis kandungan logam berat pada beton geopolimer dilakukan pada sampel dengan kuat tekan tertinggi yakni pada sampel D4. Hasil pengujian kandungan logam pada *fly ash* dan sampel D4 bisa dilihat seperti tabel dibawah ini.

Tabel 2. Hasil Analisis Kandungan Logam Pada *Fly Ash* dan Sampel D4.

	Hasil Analisis	Hasil Analisis Beton Geopolimer	Standar PP 101 /2014 (mg/L)
Nama Logam	<i>Fly ash</i> (mg/L)	(mg/L)	
Pb	8,954	2.96	0.5
Cr	6,978	0.238	2.5
Cu	12,355	7.350	10

Dari tabel diatas terlihat bahwa hasil analisa AAS menunjukkan abu terbang yang diuji mengandung logam berat Pb,Cu,Cr diatas ambang batas yang diizinkan oleh PP No.101 Tahun 2014. Sehingga limbah abu terbang tersebut perlu diolah dengan teknik solidifikasi. Berdasarkan hasil uji logam berat yang terkandung pada sampel D4 menunjukkan bahwa solidifikasi limbah abu terbang sebagai campuran beton geopolimer memberikan hasil yang signifikan untuk mengimmobilisasi logam berat yang ada di dalam limbah abu tersebut. Kandungan logam Pb yang semula 8,954 mg/L pada abu terbang berkurang menjadi 2.96 mg/L setelah disolidifikasi menjadi beton geopolimer, begitu juga dengan kadar logam lainnya seperti logam Cr yang turun nilainya dari 6.978 mg/L menjadi 0.238 mg/L dan logam Cu yang nilainya turun dari 12.355 mg/L menjadi 7.350 mg/L. Dari data diatas terlihat bahwa penggunaan KOH untuk pembuatan beton geopolimer juga memberikan pengaruh terhadap kemampuan beton geopolimer tersebut dalam mengimmobilisasi logam berat. Hal ini sesuai dengan teori yang

menyatakan bahwa geopolimer mempunyai kemampuan untuk mempertahankan unsur-unsur logam berat yang ada didalam bahan baku berupa abu terbang dengan diamobilisasi oleh matrik beton geopolimer [Zhang dkk.,2008].

4. Simpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan yang telah diuraikan dapat diambil kesimpulan sebagai berikut.

1. Peningkatan konsentrasi KOH dalam pembuatan beton geopolimer memberikan hasil kuat tekan yang lebih baik, pada konsentrasi KOH 14M diperoleh kuat tekan tertinggi sebesar 30,26 MPa sedangkan pada konsentrasi 8M diperoleh kuat tekan terendah sebesar 14,73 MPa.
2. Perbandingan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ yang besar berpengaruh terhadap kekuatan mekanik beton geopolimer. Rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ 1.2 menghasilkan kuat tekan lebih tinggi dibandingkan dengan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ 0.8, begitu juga dengan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ 2.0 menghasilkan kuat tekan yang lebih baik dibandingkan dengan rasio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{KOH}$ 1.6
3. Pada pengujian kandungan logam berat diperoleh bahwa beton geopolimer mampu mengimobilisasi logam berat yang terdapat didalam *fly ash* dengan baik. Logam Pb berkurang dari 8,954 mg/L menjadi 0.66 mg/L, logam Cr berkurang dari 6,978 mg/L menjadi 2.096 mg/L, Logam Cu berkurang dari 12.355 mg/L menjadi 7.350 mg/L. sehingga memenuhi peraturan Pemerintah Nomor 101 tahun 2014.

5. Saran

Berdasarkan penelitian yang dilakukan maka penulis dapat memberikan saran yang dapat dipergunakan untuk penelitian lebih lanjut yaitu:

1. Perlu dilakukan variasi konsentrasi KOH yang lebih besar untuk mengetahui pengaruh lebih luas pada kuat tekan beton geopolimer

2. Perlu dilakukan variasi temperature curing time dan waktu pengerasan untuk mendapatkan hasil yang lebih baik.

6. Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Bapak Ir.Aman, M.T dan Dedi Yuanda ,ST atas diskusi yang sangat berguna dan ilmu-ilmu yang bermanfaat kepada penulis dalam menyelesaikan penelitian ini.

Daftar Pustaka

- , 2014. Peraturan Pemerintah Nomor 101 Tahun 2014, Tentang Perubahan Peraturan Pemerintah Nomor 18 Tahun 1999, Tentang Pengelolaan Limbah Bahan Berbahaya dan Beracun, Sekretariat Bapedal, Jakarta.
- Helmut, R.A, 1978 : The Nature of Concrete, John Wiley & Son, Inc, New York.
- Jaarsveld, V.J.G., Deventer, J.S.J., Lukey, G.J.(2002).The effect of composition and temperature on the properties of fly ash and kaolinite-based geopolymer. *Chemical Engineering Journal*, 89, 63-73.
- Parthiban,K,Saravana ,R,M,K. (2014). Effect of sodium hidroxide cocentration and alkaline ratio on the compressive strength of slag based on geopolymer concrete. *International Journal of ChemTech Research*,6,2446-2450.
- Samadhi, T.W., Pratama, P.P., Syntesis of Geopolymer from Indonesian Kaolin and Fly Ash as a Green Construction Material,AUN/SEED-Net Regional Conference on Chemical Engineering, Pattaya, Thailand, 7-8 February 2013.
- Yuanda, D.,Fadli, A., Drastinawati. (2015). Pemanfaatan Limbah Abu terbang (fly ash) batubara sebagai bahan pembuatan beton geopolimer. *Jurnal Online Mahasiswa Fakultas Teknik UR*, 2, 1-7.
- Phair,J.W;van Deventer ,J.S.J. (2001). Effect of Silicate activator pH on the leaching and material characterictic s of waste-based inorganic polymers, *mineral engineering*. 14,289-304.

- Phair, J. W.; van Deventer, J. S. J. (2002). Effect of Silicate activator pH on the microstructural characteristics of waste-based geopolymer, *international journal of mineral processing*. 66.121-143.
- Zhang, J., Provis, J. L., Feng, D., dan Van Deventer, J. S. J., (2008), “ Geopolymer for Immobilization of Cr^{6+} , Cd^{2+} and Pb^{2+} ”, *Journal of Hazardous Materials*, 157, 587-598 .