

IMPREGNASI ZEOLIT ALAM DENGAN TiO₂ UNTUK DEGRADASI JINGGA METIL SECARA FOTOKATALITIK

Wahyu Windati, Yusuf Syah, Alfa Akustia Widati.

Program Studi S1 Kimia, Departemen Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi,

Universitas Airlangga

E-mail : winda_chil@yahoo.co.id

ABSTRACT

The research is combination of TiO₂ with natural zeolite by impregnation to degrade methyl orange with photocatalytic method. The first stage in this research is the preparation of natural zeolite by crushing, washing, and calcination to remove impurities. The second stage is the process of impregnation, mixing TiO₂ with zeolites, absolute ethanol, and calcination at a temperature of 400 °C. The formed TiO₂ impregnated on zeolites to test for degradation of methyl orange. The test showed when TiO₂ impregnated on the zeolite (TiO₂/zeolit) and H₂O₂ can degrading methyl orange 10 ppm at pH 4 during 180 minutes. Characterization of TiO₂ impregnated zeolite (TiO₂/zeolit) using XRD and FTIR. Activity TiO₂/zeolit by photocatalytic in degrading methyl orange is higher than TiO₂, but the activity is not much different when compared to using zeolites. It is thought the process of adsorption on zeolites.. So that from the results obtained on the zeolite impregnated TiO₂ (TiO₂/zeolit) can degrading methyl orange of 50,15%.

Keywords: zeolite, TiO₂, photodegradation, methyl orange

ABSTRAK

Telah dilakukan penelitian tentang kombinasi TiO₂ dengan zeolit alam secara impregnasi untuk mendegradasi jingga metil dengan metode fotokatalitik. Tahap pertama yang dilakukan dalam penelitian ini adalah preparasi zeolit alam dengan cara penggerusan, pencucian, dan kalsinasi untuk menghilangkan pengotor. Tahap kedua

adalah proses impregnasi TiO_2 pada zeolit, dengan mencampurkan TiO_2 , zeolit, etanol absolut, dan kalsinasi pada temperatur $400\text{ }^\circ\text{C}$. Setelah terbentuk TiO_2 terimpregnasi pada zeolit dilakukan uji. Hasil uji menunjukkan ketika TiO_2 terimpregnasi pada zeolit ($\text{TiO}_2/\text{zeolit}$) ditambah H_2O_2 mampu mendegradasi larutan jingga metil 10 ppm secara optimum pada pH 4 saat menit ke- 180. Karakterisasi TiO_2 terimpregnasi zeolit ($\text{TiO}_2/\text{zeolit}$) dilakukan dengan menggunakan XRD dan FTIR. Aktivitas fotokatalitik $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ pada degradasi jingga metil lebih tinggi daripada TiO_2 , akan tetapi aktivitas tersebut tidak jauh berbeda bila dibandingkan dengan menggunakan zeolit. Hal ini diduga adanya proses adsorpsi pada zeolit. Sehingga dari hasil yang didapat TiO_2 terimpregnasi pada zeolit ($\text{TiO}_2/\text{zeolit}$) mampu mendegradasi larutan jingga metil sebesar 50,15%.

Kata Kunci: zeolit, TiO_2 , fotodegradasi, jingga metil.

PENDAHULUAN

Semakin meningkatnya industri tekstil yang ada di Indonesia maka semakin banyak pula masalah yang ditimbulkan. Industri ini melibatkan pewarnaan dalam produksinya. Banyak industri lain yang memerlukan pewarnaan, misalnya industri garmen, industri peralatan kertas, dan industri percetakan. Proses pewarnaan merupakan faktor penting dalam berbagai industri tersebut (Wijaya dkk, 2005).

Limbah merupakan produk samping dari proses industri. Limbah cair yang dikeluarkan oleh industri tekstil mengandung berbagai zat pewarna yang berbahaya bagi lingkungan, misalnya golongan azo di mana zat warna tersebut memiliki sifat *non-biodegradable* (Rashed dkk, 2007). Oleh karena itu, pengolahan limbah cair harus dilakukan secara cermat dan terpadu di dalam proses produksi dan setelah proses produksi agar pengendalian berlangsung dengan efektif dan efisien. Langkah-langkah pengolahan yang dilaksanakan secara terpadu dapat dimulai dengan upaya meminimalisir limbah (*waste minimization*), pengolahan limbah (*waste treatment*), hingga pembuangan limbah. Pengolahan limbah cair dalam proses produksi

dimaksudkan untuk meminimalkan volum, konsentrasi, dan toksisitas limbah yang dihasilkan (Fatimah dkk, 2006).

Metode-metode penanggulangan limbah yang sering dilakukan adalah metode adsorpsi, biodegradasi, serta metode kimia seperti klorinasi dan ozonisasi. Metode-metode tersebut cukup efektif dalam menanggulangi limbah namun metode tersebut memerlukan biaya operasional yang sangat besar. Masih banyak juga metode-metode lain yang biasa digunakan, seperti koagulasi kombinasi, oksidasi elektrokimia, flokulasi, osmosis balik, dan adsorpsi menggunakan karbon aktif. Namun, metode-metode tersebut juga memiliki banyak kelemahan yaitu munculnya masalah baru seperti dihasilkannya fasa baru yang mengandung polutan yang lebih terkonsentrasi (Wijaya dkk, 2006). Di antara metode-metode yang ada, fotodegradasi merupakan metode alternatif yang relatif murah dan mudah diterapkan. Metode ini memerlukan bahan semikonduktor antara lain TiO_2 , ZnO , atau Fe_2O_3 serta radiasi sinar ultraviolet (UV). Di antara bahan-bahan semikonduktor yang ada, TiO_2 merupakan bahan semikonduktor yang ketersediannya banyak di pasaran serta tergolong paling unggul (Fatimah dkk, 2005). TiO_2 sering digunakan sebagai fotokatalisis untuk menguraikan senyawa organik seperti pentaklorofenol (Krisdaningrum, 2003), *cibracron yellow*, dan jingga metil.

Sementara itu, Indonesia merupakan negara dengan sumber daya alam mineral zeolit yang melimpah. Namun, mineral zeolit tersebut belum dimanfaatkan secara optimal (Fatimah dkk, 2006). Zeolit merupakan senyawa alumina silika yang mempunyai pori dan luas permukaan yang relatif besar (Sutarti dan Rachmawati, 1994). Dalam bidang industri, zeolit dimanfaatkan sebagai penukar ion, katalis, dan adsorben. Dalam bidang teknologi pengolahan lingkungan, zeolit telah dikenal luas sebagai bahan adsorben yang handal, sehingga zeolit dapat diaplikasikan untuk pengolahan limbah cair dari industri tekstil. Eriana (2003) melakukan penelitian tentang TiO_2 yang digunakan untuk aplikasi degradasi fenol dan hasil yang di dapat kurang maksimal.

Melihat kenyataan dan fakta yang ada, maka perlu adanya upaya mencari alternatif untuk mengatasi masalah penanggulangan limbah. Berdasarkan uraian di atas, penelitian ini bertujuan untuk mengurangi limbah cair sebagai produk samping dari industri tekstil yang berupa zat warna jingga metil yang nantinya akan dianalisis dengan cara degradasi fotokatalitik, yaitu reaksi yang menggunakan bantuan cahaya untuk mendegradasi suatu zat dengan kombinasi zeolit alam dan TiO_2 sebagai katalis. Bentuk kombinasi tersebut adalah impregnasi TiO_2 terhadap zeolit alam, yaitu proses pemasukan prekursor logam (TiO_2) terhadap penyangga (zeolit). Aplikasi fotokatalisis merupakan salah satu alternatif yang cukup baik dalam menanggulangi limbah cair tersebut. Terapan ini dilakukan untuk mengurangi konsentrasi limbah cair. Untuk mengetahui bahwa impregnasi TiO_2 dengan zeolit alam dapat mendegradasi senyawa jingga metil maka perlu dilakukan penelitian degradasi jingga metil oleh TiO_2 /zeolit secara fotokatalitik.

METODE PENELITIAN

Bahan-bahan

Bahan-bahan yang akan digunakan dalam penelitian ini, antara lain: zeolit alam dari daerah Turen-Malang-Jawa Timur, etanol absolut 99,8 %, jingga metil, TiO_2 , HCl 37%, NaOH, H_2O_2 15 %, akuadem, dan aluminium foil.

Alat-alat

Alat-alat yang akan digunakan dalam penelitian ini, antara lain: satu set alat gelas, pengaduk magnetik, neraca analitik, lumpang porselen dan penggerus, *sentrifuge* model 228, *furnace*, oven, pH meter, spektrofotometer *ultraviolet-visible* (UV-Vis), spektroskopi transformasi fourier infra merah (FTIR) Shimadzu, difraktometer sinar X Philips Analytical, dan reaktor fotokatalitik.

Prosedur Penelitian

Preparasi zeolit alam

Sebanyak 100 g zeolit alam digerus sampai halus dan ditambahkan dengan 400 mL akuadem, kemudian dipisahkan antara zeolit dan akuadem. Zeolit

dikeringkan dalam oven pada temperatur 120 °C dan dikalsinasi pada temperatur 400 °C selama 5 jam. Setelah zeolit alam kering, hasil yang diperoleh kemudian dianalisis dengan difraksi sinar X untuk mengetahui jenis mineral penyusun zeolit.

Preparasi TiO₂ terimpregnasi pada zeolit (TiO₂/zeolit)

Pembuatan TiO₂ terimpregnasi pada zeolit dilakukan dengan cara mencampurkan 20 g zeolit dengan 1 g TiO₂ ditambah 20 mL etanol absolut sambil diaduk. TiO₂/Zeolit dikeringkan dalam oven dan dikalsinasi pada temperatur 400 °C selama 5 jam. Padatan yang diperoleh dianalisis dengan difraksi sinar X dan FTIR.

Penentuan waktu degradasi optimum

Larutan jingga metil 10 ppm ditambahkan TiO₂/zeolit dan H₂O₂ 15 %. Campuran dihomogenkan dan diiradiasi dalam reaktor dengan sinar UV 3x8 Watt selama 3 jam. Selang waktu menit ke- 5, 10, 20, 30, 45, 60, 120, dan 180 menit diambil larutan, lalu dianalisis dengan spektrofotometer UV-Vis untuk mengetahui kadar sisa jingga metil dengan blangko akuadem pada panjang gelombang maksimum.

Penentuan pH optimum

Larutan sampel jingga metil 10 ppm ditambahkan TiO₂/zeolit dan H₂O₂ 15 %. Ke dalam campuran ditambahkan larutan HCl atau NaOH. Larutan yang telah diatur pHnya diiradiasi dengan sinar UV 3x8 Watt selama waktu optimum. Hasil degradasi larutan diambil dan diukur absorbansinya pada panjang gelombang maksimumnya dengan spektrofotometer UV-Vis.

Degradasi jingga metil dengan TiO₂/zeolit, zeolit, TiO₂, dan tanpa katalis pada kondisi optimum

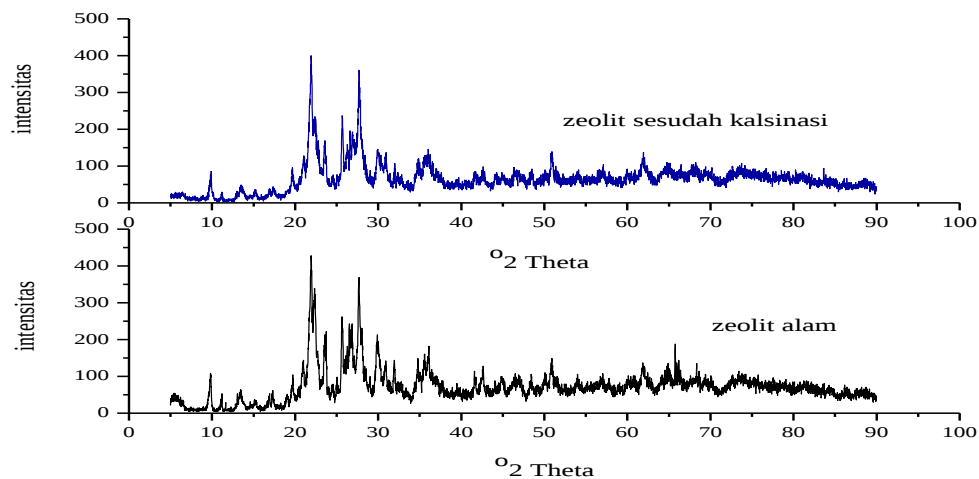
Larutan sampel jingga metil 10 ppm ditambah dengan katalis dan H₂O₂ 15 % pada kondisi pH optimum. Campuran dihomogenkan dan diiradiasi dengan sinar UV 3x8 Watt dalam reaktor selama waktu degradasi optimum. Larutan hasil degradasi

diukur absorbansinya dengan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang maksimum.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Preparasi Zeolit Alam

Hasil analisis difraksi sinar X dalam bentuk difraktogram ditampilkan pada Gambar 1.



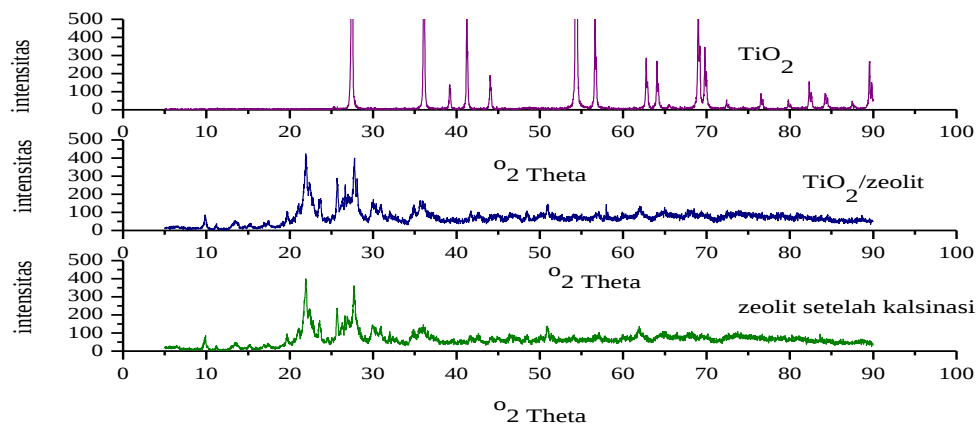
Gambar 1. Difraktogram zeolit alam dan zeolit setelah kalsinasi 400 °C.

Dari hasil difraktogram tidak terlihat perubahan struktur yang berarti, hasil analisis pada sudut difraksi $2\theta = 19,69^\circ$ menunjukkan bahwa sebagian mineral penyusun utama zeolit alam Turen-Malang-Jawa Timur adalah mordenit. Puncak-puncak lain yang menunjukkan kandungan mordenit adalah pada sudut difraksi $2\theta = 6,44; 9,82; 13,42; 22,32; 23,57; 25,65; 26,27; \text{ dan } 27,69^\circ$. Puncak – puncak tersebut sesuai dengan puncak khas mordenit seperti yang dilaporkan oleh Wijaya (2006).

Namun difraktogram antara zeolit alam dengan zeolit setelah kalsinasi tidak mengalami perubahan yang berarti. Hal ini membuktikan bahwa proses kalsinasi tidak mempengaruhi jenis mineral penyusun dari zeolit alam tersebut.

Preparasi TiO₂ Terimpregnasi pada Zeolit (TiO₂/zeolit)

Hasil analisis difraksi sinar X dalam bentuk difraktogram ditampilkan pada Gambar 2.

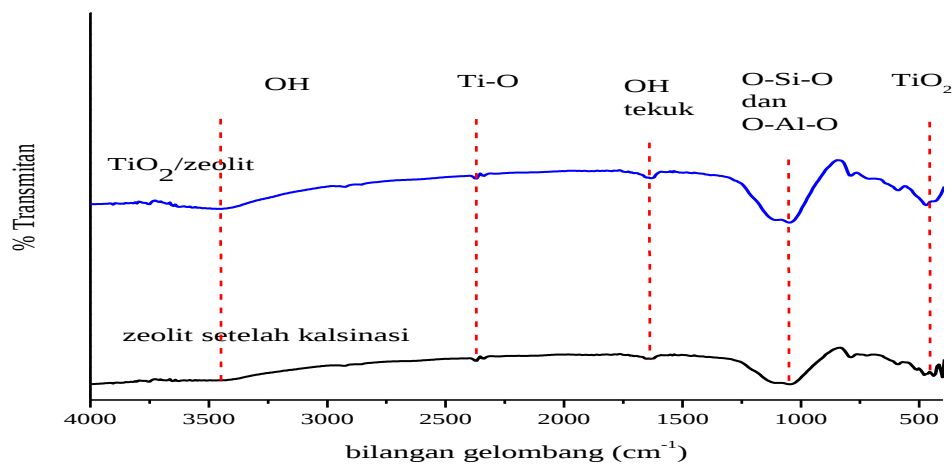


Gambar 2. Difraktogram XRD TiO₂, TiO₂/zeolit, dan zeolit setelah kalsinasi 400 °C.

Hasil difraktogram menunjukkan bahwa bentuk TiO₂ yang terdapat dalam zeolit adalah bentuk rutil yang ditunjukkan adanya sudut difraksi $2\theta = 27,45^\circ$ dan $36,09^\circ$. Puncak tersebut sesuai dengan puncak khas rutil seperti yang dilaporkan oleh Fatimah dan Karna W (2005).

Proses impregnasi antara TiO₂ dengan zeolit yang disertai kalsinasi pada temperatur 400 °C tidak mengalami perubahan struktur zeolit, hal ini terlihat bahwa puncak yang muncul pada difraktogram zeolit alam dan zeolit setelah kalsinasi tidak mengalami banyak perubahan, sehingga proses impregnasi tidak merusak struktur dari zeolit tersebut.

Hasil difraktogram tersebut belum dapat diketahui secara pasti bahwa TiO₂ telah menempel di dalam zeolit, sehingga analisis spektroskopi transformasi fourier infra merah (FTIR) dilakukan. Hasil analisis dengan spektroskopi transformasi fourier infra merah memberikan informasi mengenai serapan gugus fungsional. Karakterisasi serapan gugus fungsional dari zeolit dan TiO₂/zeolit terlihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Spektra FTIR zeolit setelah kalsinasi 400 °C dan TiO₂/zeolit.

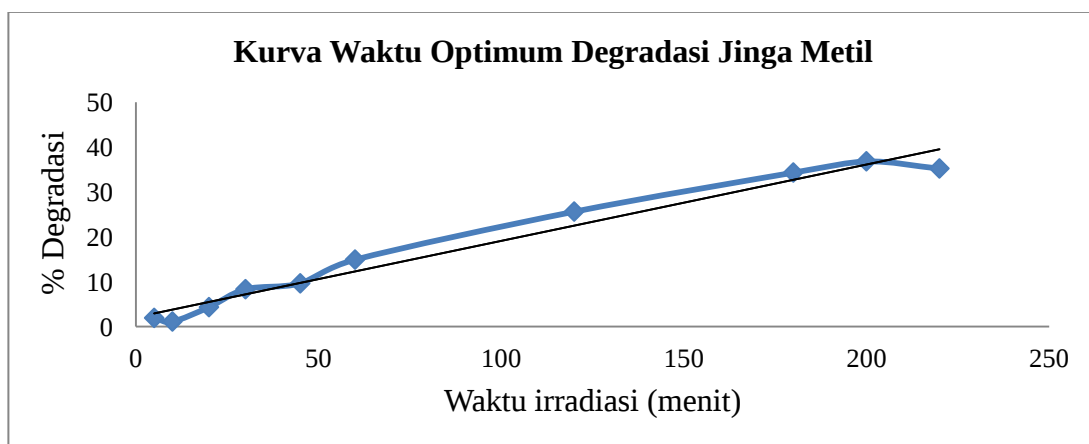
Hasil analisis dengan spektroskopi infra merah hanya dapat memberikan informasi mengenai serapan gugus fungsional sehingga secara umum spektra zeolit yang telah dikalsinasi pada temperatur 400 °C dengan TiO₂/zeolit hampir sama. Pada zeolit alam setelah kalsinasi, serapan gugus fungsional terdapat pada bilangan gelombang 3436 cm⁻¹ yang menunjukkan adanya gugus OH regang H₂O, hal ini mengidentifikasi bahwa zeolit mengalami dehidrasi akibat kalsinasi. Serapan pada bilangan gelombang 1639,4 cm⁻¹ menunjukkan gugus fungsional dari OH tekuk. Pada 1045,5 cm⁻¹ terdapat regangan dari O-Si-O dan O-Al-O. Pada 2307 cm⁻¹ menunjukkan serapan Ti-O dan pada bilangan gelombang 420,5 cm⁻¹ mengidentifikasi adanya gugus fungsional dari karakter TiO₂. Sedangkan pada TiO₂/zeolit serapan gugus fungsionalnya hampir sama dengan zeolit setelah kalsinasi, sehingga antara zeolit setelah kalsinasi dengan TiO₂/zeolit tidak banyak mengalami perubahan gugus fungsi yang berarti, hanya saja pada TiO₂/zeolit terlihat adanya vibrasi lebih besar pada bilangan gelombang 420,5 cm⁻¹ yang menunjukkan regangan dari TiO₂ yang ditunjukkan dengan adanya spektra yang melebar. Dengan begitu mengindikasikan bahwa proses kalsinasi tidak merusak ikatan tersebut.

Penentuan waktu degradasi optimum

Pada penelitian ini, waktu optimum ditentukan dari hubungan antara waktu degradasi jingga metil dengan absorbansi jingga metil sisa. Waktu yang memberikan konsentrasi sisa jingga metil paling kecil dinyatakan sebagai waktu optimum atau dapat ditentukan berdasarkan jumlah terbesar prosentase jingga metil yang terdegradasi. Dari hasil analisis didapat waktu degradasi selama 3 jam yang merupakan waktu optimum untuk mendegradasi jingga metil. Tabel optimasi waktu degradasi dapat dilihat berdasarkan Tabel 1 berikut.

Tabel 1. Waktu optimum degradasi jingga metil

No.	Waktu irradiasi (menit)	Absorbansi	Kadar jingga metil sisa (ppm)	% Degradasi
1.	5	0,664	9,81	1,9
2.	10	0,670	9,89	1,1
3.	20	0,647	9,57	4,3
4.	30	0,619	9,17	8,3
5.	45	0,610	9,04	9,6
6.	60	0,573	8,51	14,9
7.	120	0,498	7,44	25,6
8.	180	0,437	6,57	34,3
9.	200	0,419	6,32	36,8
10.	220	0,430	6,48	35,2



Gambar 4. Kurva waktu optimum degradasi jingga metil

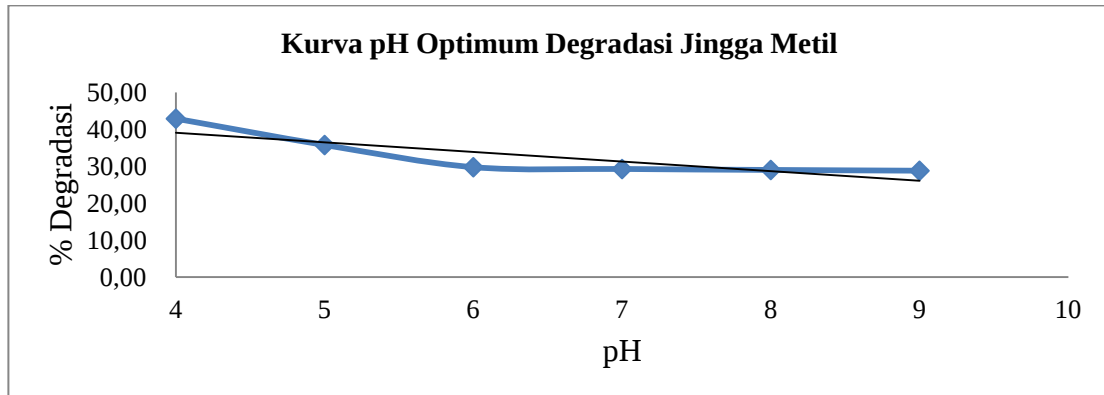
Dari hasil analisis Gambar 4, waktu optimum adalah waktu yang dapat digunakan untuk mendegradasi jingga metil secara maksimal dan efisien, sehingga waktu yang dapat dijadikan sebagai waktu optimum adalah pada saat menit ke-200. Hal ini didasarkan pada waktu kontak antara zat yang didegradasi dengan katalis semakin lama maka semakin besar pula prosentase dalam mendegradasi jingga metil. Namun pada saat menit ke-200, prosentase degradasi jingga metil tidak menunjukkan perubahan yang signifikan apabila dibandingkan pada saat menit ke-180. Dengan begitu, waktu yang menunjukkan menit ke-200 tidak efisien dalam mendegradasi jingga metil, sehingga dapat disimpulkan bahwa waktu optimum degradasi jingga metil terjadi pada menit ke 180.

Penentuan pH optimum

Pada penelitian ini, pH optimum degradasi merupakan pH yang menunjukkan proses degradasi dapat berlangsung dengan baik. Kurva pH optimum dibuat berdasarkan kondisi pH terhadap absorbansi dan ditentukan berdasarkan jumlah terbesar prosentase jingga metil yang terdegradasi. Dari hasil yang didapat, pH 4 merupakan pH optimum dari degradasi jingga metil. Tabel optimasi pH dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2. Data penentuan pH optimum degradasi jingga metil

No.	pH	Absorbansi	Kadar jingga metil sisa (ppm)	% Degradasi
1.	4	0,38	5,71	42,89
2.	5	0,43	6,42	35,75
3.	6	0,47	7,03	29,74
4.	7	0,47	7,07	29,25
5.	8	0,47	7,09	28,99
6.	9	0,47	7,10	28,78



Gambar 5. Kurva pH optimum degradasi jingga metil

Jingga metil merupakan pewarna anionik sedangkan TiO_2 merupakan semikonduktor yang bermuatan positif apabila dalam keadaan asam, sehingga dalam proses degradasi terjadi interaksi elektrostatis antara TiO_2 dengan jingga metil. Hal tersebut yang menyebabkan proses degradasi jingga metil dalam keadaan asam akan lebih besar daripada keadaan basa. Sehingga didapatkan pH 4 sebagai pH optimum dalam mendegradasi jingga metil.

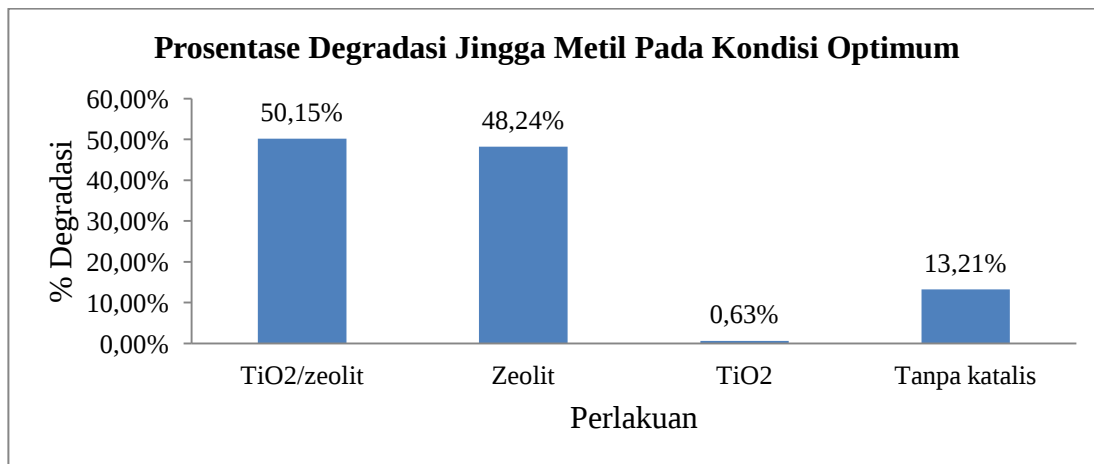
Degradasi Larutan Sampel Jingga Metil

Pada penelitian ini, dibandingkan efektivitas katalis TiO_2 /zeolit dengan zeolit, TiO_2 , dan tanpa adanya katalis dalam proses degradasi jingga metil. Semua perlakuan pada penelitian tersebut dilakukan dalam kondisi optimum, yaitu pada pH 4 dan waktu degradasi selama 180 menit.

Data kadar jingga metil sisa setelah degradasi dengan TiO_2 /zeolit, zeolit, TiO_2 , dan tanpa katalis pada waktu dan kondisi pH optimum disampaikan pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil perlakuan degradasi jingga metil pada kondisi optimum

No.	Katalis	Absorbansi	Kadar jingga metil sisa (ppm)	% Degradasi
1.	TiO_2 /zeolit	0,33	4,98	50,15
2.	Zeolit	0,34	5,17	48,24
3.	TiO_2	0,68	10,05	0,63
4.	Tanpa Katalis	0,58	8,67	13,21



Gambar 6. Hasil perbandingan degradasi menggunakan TiO₂/Zeolit, zeolit, TiO₂, dan tanpa katalis.

Berdasarkan penelitian ini, hasil impregnasi TiO₂ dengan zeolit dapat mendegradasi jingga metil paling besar, yaitu 50,15 %. Kombinasi TiO₂ dengan zeolit secara impregnasi kurang begitu efektif dalam mendegradasi jingga metil, hal ini terlihat bahwa dengan menggunakan katalis zeolit dan TiO₂/zeolit tidak terjadi perbedaan yang berarti. Diduga pada saat proses impregnasi, distribusi TiO₂ tidak menyebar merata pada pori-pori. Sehingga proses yang terjadi dalam penelitian ini tidak hanya secara fotokatalitik dari TiO₂ melainkan juga secara adsorpsi dari zeolit yang lebih dominan.

KESIMPULAN

Aktivitas TiO₂ terimpregnasi pada zeolit (TiO₂/zeolit) dalam mendegradasi jingga metil adalah sebesar 50,15 % dan terjadi pada kondisi optimum yaitu pada pH 4 selama 180 menit. TiO₂ terimpregnasi pada zeolit (TiO₂/zeolit) memiliki aktivitas lebih tinggi dibandingkan TiO₂, zeolit, dan tanpa katalis dalam mendegradasi jingga metil dengan prosentase masing-masing adalah 50,15; 0,63; 48,24, dan 13,21 %

DAFTAR PUSATAKA

- Wijaya, K., Tahir, I., Haryanti, N., 2005, **Sintesis Fe_2O_3 -Montmorilonit Dan Aplikasinya Sebagai Fotokatalis Untuk Degradasi Zat Pewarna Congo Red**, *Indonesian Journal of Chemistry*, 5(1), 41-47.
- Wijaya, K., Sugiharto, E., Fatimah, I., Sudiono, S., Kurniaysih, D., 2006, **Utilisasi TiO_2 -Zeolit dan Sinar UV untuk Fotodegradasi Zat Warna Congo Red**, *TEKNOIN*, 11(3), 199-209.
- Sutarti, M., Rachmawati, M., 1994, **Zeolit Tinjauan Literatur**, *Pusat Dokumentasi dan Informasi Ilmiah, LIPI*, Jakarta.
- Rashed, M.N., El-Amin, A.A., 2007, **Photocatalytic Degradation of Methyl Orange in Aqueous TiO_2 under Different Solar Irradiation Sources**, *Internasional Journal of Physical Science*, Vol. 2, No.3, 073-081.
- Fatimah, I dan Wijaya, K., 2005, **Sintesis TiO_2 /Zeolit Sebagai Fotokatalisis Pada Pengolahan Limbah Cair Industri Tapioka Secara Adsorpsi-Fotodegradasi**, *TEKNOIN*, Vol.10, No.4, 257-267.
- Fatimah, I., Sugiharto, E., Wijaya, K., Tahir, I., Kamalia., 2006, **Titan Dioksida Terdispersi Pada Zeolit Alam (TiO_2 /Zeolit) dan Aplikasinya untuk Fotodegradasi Congo Red**, *Indonesia Journal of Chemistry*, Vol.6, No.1, 138-42.
- Krisdaningrum, N., 2003, **Pemanfaatan Suspensi TiO_2 untuk Proses Degradasi Fotokatalisis Senyawa Pentaklorofenol**, *Skripsi*, Jurusan Kimia, FMIPA UNAIR.
- Eriana, L., 2003, **Pemanfaatan Suspensi TiO_2 Sebagai Fotokatalisis Degradasi Fenol dan pH**, *Skripsi*, Jurusan Kimia, FMIPA UNAIR.