

**PENGOLAHAN LIMBAH ORGANIK DAN ANORGANIK
MENGUNAKAN KOMBINASI FOTOKATALIS TiO_2 DAN
SENYAWA *ETHYLENEDIAMINETETRAACETIC ACID* (EDTA)**

F.X. Sulistiyanto W.S.¹⁾, Achmad Wildan²⁾, Eka Susanti Hp.³⁾

¹⁾Sekolah Tinggi Ilmu Farmasi "YAYASAN PHARMASI" Semarang
email: fxsulistiyanto@gmail.com

²⁾Sekolah Tinggi Ilmu Farmasi "YAYASAN PHARMASI" Semarang
email: achmadwildan58@gmail.com

³⁾Sekolah Tinggi Ilmu Farmasi "YAYASAN PHARMASI" Semarang
Email : ekaputriana212@yahoo.co.id

Abstrak

Titanium dioksida (TiO_2) adalah senyawa yang sering digunakan pada proses fotokatalisis, untuk lebih meningkatkan aktivitas fotokatalis TiO_2 dapat dilakukan dengan kombinasi TiO_2 dengan suatu khelat asam etilendiamintetraasetat (EDTA), EDTA ditambahkan untuk mencegah terjadinya rekombinasi electron-hole sehingga aktivitas fotokatalisis dalam mendegradasi senyawa organik dan mereduksi senyawa anorganik lebih efektif dan optimal. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh lama penyinaran dan pengaruh penambahan senyawa EDTA pada TiO_2 terhadap fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion $Cu(II)$, massa kombinasi TiO_2 dengan EDTA yang digunakan adalah 1 : 0, 1 : 1, dan 1 : 2. Sedangkan variasi lama penyinaran yang digunakan adalah 20, 40, dan 60 menit. Metode yang digunakan untuk mengetahui konsentrasi amoksisilin menggunakan Spektrofotometri UV dan konsentrasi ion $Cu(II)$ menggunakan Spektrofotometri Serapan Atom. Hasil penelitian menunjukkan ada pengaruh variasi lama penyinaran dan penambahan senyawa EDTA pada katalis TiO_2 terhadap fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam $Cu(II)$. Kondisi optimal lama penyinaran pada proses fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam $Cu(II)$ adalah 60 menit dan dengan variasi TiO_2 kombinasi EDTA yaitu 1 : 2, pada konsentrasi tersebut amoksisilin yang terdegradasi sebesar 54,69% dan ion logam $Cu(II)$ yang tereduksi sebesar 47,74%.

Kata kunci: Titanium dioksida, Fotokatalis, asam diamintetraasetat (EDTA), ion logam Cu (II), Amoksisillin

Abstract

Titanium dioxide (TiO_2) is a compound that is often used in the photocatalyst, to increase the activity of TiO_2 photocatalyst can be done by a combination of TiO_2 with a chelate ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA), with added EDTA is expected to prevent the recombination of electron-hole so that the photocatalyst activity in degrading organic compounds and inorganic compounds reduce more effectively and optimally. This study aims to determine the effect of irradiation time and the effect of adding the compound EDTA on TiO_2 against photodegradation amoxicillin and photoreduction $Cu(II)$ metal ion, the variation of a combination of TiO_2 with EDTA used is 1 : 0, 1 : 1 and 1 : 2. While variations of irradiation time used are 20, 40, and 60 minute. The method used to determine the concentration of amoxicillin using UV spectrophotometry and concentration of $Cu(II)$ metal ion using atomic absorption spectrophotometry. The results showed have effected of variations irradiation time and the addition of EDTA on TiO_2 catalyst against photodegradation amoxicillin and photoreduction $Cu(II)$ metal ion. Optimal conditions of irradiation time in the process of photodegradation amoxicillin and photoreduction $Cu(II)$ metal ion is 60 minute and the variation of a combination of TiO_2 with EDTA used is 1 : 2, at these concentrations of amoxicillin degraded by 54.69% and the $Cu(II)$ metal ion were reduced by 47.74%.

Keywords : Titanium dioxide, Photocatalyst, ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA), Cu (II) metal ion, Amoxicillin

PENDAHULUAN

Limbah zat anorganik seperti logam berat merupakan limbah berbahaya, contoh logam berat yang sering ditemukan yaitu ion logam Cu(II) (Slamet dkk., 2003). Ion Cu(II) dalam jumlah lebih dari 1 mg/L akan berdampak buruk bagi manusia yaitu menyebabkan cirrhosis hati (Palar, 1994), sedangkan limbah dengan kandungan senyawa organik seperti residu amoksisilin dapat memicu beberapa reaksi alergi dan menyebabkan resistensi antibakteri pada mikroorganisme (Halling-Sorensen dkk., 1998), sehingga diperlukan metode alternatif untuk mendegradasi senyawa organik dan mereduksi senyawa anorganik agar senyawa tersebut menjadi tidak toksik.

Metode pengolahan limbah yang relatif baru dan menarik perhatian adalah metode fotokatalisis. Fotokatalis adalah bahan yang dapat meningkatkan laju reaksi reduksi oksidasi yang diinduksi oleh cahaya. Kelebihan metode fotokatalisis dengan TiO₂ yaitu dapat mendegradasi senyawa organik dan mereduksi senyawa anorganik menjadi komponen-komponen sederhana dan lebih aman, ekonomis, ramah lingkungan, dan memiliki serapan di wilayah sinar UV (Permatasari dkk., 2015). Dalam proses fotoreduksi terkatalisis TiO₂, ion Cu(II) akan tereduksi dengan adanya elektron yang dilepaskan dari reaksi fotokatalis setelah menyerap energi foton, membentuk logam Cu yang tidak beracun dan stabil, selain itu metode ini mudah dilakukan, dan tidak memerlukan biaya yang besar. Fotokatalis jika disinari dengan panjang gelombang antara 100-400 nm elektron akan teraktivasi dari pita valensi menuju pita konduksi sehingga menyebabkan terbentuknya hole (muatan positif) pada pita valensi berinteraksi dengan H₂O membentuk radikal OH yang bersifat sebagai oksidator kuat sehingga akan

mendegradasi senyawa organik dan elektron pada pita konduksi (muatan negatif) yang berguna untuk mereduksi senyawa anorganik (Perdana dkk., 2014).

Pasangan elektron ini bersifat tidak stabil dan dapat terjadi rekombinasi dengan melepaskan panas, karena itu diperlukan senyawa yang dapat menjaga kesetimbangan muatan dalam sistem dengan cara mereduksi dan mencegah rekombinasi electron-hole dengan menambahkan doping pada semikonduktor fotokatalis. Penambahan fotokatalis TiO₂ kombinasi EDTA diharapkan dapat mencegah terjadinya rekombinasi electron-hole sehingga aktifitas fotokatalis dalam mendegradasi senyawa organik dan mereduksi senyawa anorganik menjadi lebih efektif dan optimal. Melalui penelitian ini diharapkan pencemaran limbah khususnya amoksisilin dan ion Cu(II) dapat diolah dan dihilangkan melalui metode fotokatalisis.

METODE

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah TiO₂ (Merck), amoksisilin trihidrat, Urea p.a, CuSO₄.5H₂O p.a, HCl (p), Na.EDTA, aquadestilata, kertas saring Whatman 42 (Φ 110 mm). Peralatan yang digunakan meliputi Spektrofotometer Serapan Atom merk Perkin Elmer no seri 3110, dan Spektrofotometer UV mini-1240, reaktor yang dilengkapi dengan satu set alat pengaduk magnetik merk Spinbar ukuran 2 cm, lampu UV 20 watt tipe Black Light Blue (BLB) merk Philips, dan lampu tungsten 45 watt merk VDR, erlenmeyer, pipet volume, corong gelas, labu ukur, gelas beker, neraca analitik.

Pada penelitian ini dilakukan proses fotodegradasi dengan cara menyinari campuran yang terdiri dari larutan amoksisilin dengan konsentrasi 20 mg/L sebanyak 50 mL, kemudian ditambah dengan larutan ion logam Cu(II) 4 mg/L

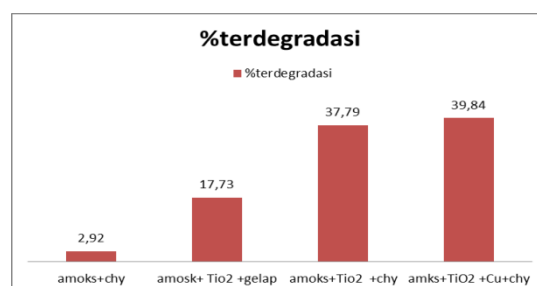
sebanyak 25 mL, dan ditambahkan fotokatalis TiO₂ dopan-N yang bervariasi sehingga diperoleh suspensi. Erlenmeyer ditutup dengan plastik transparan kemudian disinari dengan lampu tungstein disertai pengadukan selama waktu tertentu. Untuk memperoleh filtrat dari suspensi tersebut dilakukan penyaringan dengan kertas whatman. Selanjutnya filtrat dianalisis dengan alat spektrofotometer UV untuk menentukan konsentrasi amoksisilin yang tidak terdegradasi dan alat Spektrofotometer Serapan Atom (SSA) untuk menentukan konsentrasi ion logam Cu(II) yang tidak tereduksi. Selanjutnya untuk mengetahui pengaruh fotokatalis TiO₂ kombinasi EDTA dilakukan dengan cara menyinari campuran yang terdiri dari larutan amoksisilin dengan konsentrasi 20 mg/L sebanyak 25 ml, kemudian ditambah dengan larutan ion logam Cu(II) 4 mg/L sebanyak 25 mL, ditambahkan variasi perbandingan larutan TiO₂ dan EDTA yaitu 1 : 0, 1 : 1, dan 1 : 2 ke dalam erlenmeyer ditutup dengan plastik transparan kemudian disinari dengan lampu UV disertai pengadukan selama waktu tertentu. Untuk memperoleh filtrat dari suspensi tersebut dilakukan penyaringan dengan kertas whatman. Selanjutnya filtrat dianalisis dengan alat spektrofotometer UV untuk menentukan konsentrasi amoksisilin yang tidak terdegradasi dan alat Spektrofotometer Serapan Atom (SSA) untuk menentukan konsentrasi ion logam Cu(II) yang tidak tereduksi. Berdasarkan data absorbansi yang diperoleh, konsentrasi amoksisilin dan ion Cu(II) sisa dihitung dengan memasukkan data absorbansi pada kurva standar.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh lama penyinaran dan kombinasi senyawa EDTA terhadap efektivitas fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion Cu (II) menggunakan

fotokatalis TiO₂. Proses fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam Cu (II) dilakukan dengan cara menyinari campuran yang terdiri dari larutan amoksisilin, larutan ion logam Cu (II), serta serbuk fotokatalis TiO₂ menggunakan sinar lampu UV disertai dengan pengadukan menggunakan pengaduk magnet didalam sebuah reaktor tertutup. Lampu UV ini berfungsi sebagai sumber energi foton yang akan mengaktivasi TiO₂ sehingga reaksi fotokatalis dapat berlangsung, sedangkan pengaduk magnet digunakan untuk mencampurkan semua reaktan secara merata sehingga proses fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam Cu (II) berlangsung efektif.

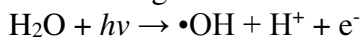
Untuk mengetahui pengaruh penyinaran terhadap fotodegradasi amoksisilin dilakukan orientasi dengan cara menyinari larutan amoksisilin 20 mg/L tanpa penambahan fotokatalis TiO₂ dan larutan ion logam Cu (II). Selanjutnya dilakukan orientasi untuk mengetahui pengaruh penambahan fotokatalis TiO₂ terhadap fotodegradasi amoksisilin dengan dan tanpa adanya sinar lampu UV. Dan yang terakhir dilakukan orientasi untuk mengetahui pengaruh penambahan fotokatalis TiO₂ dan ion logam Cu (II) 4 mg/L serta penyinaran dengan lampu UV terhadap fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam Cu(II). Orientasi dilakukan dengan waktu kontak selama 1 jam. Hasil kajian orientasi tersebut ditunjukkan pada gambar dibawah



Gambar 1.Grafik Orientasi Peran Penyinaran Lampu Tungstein, Fotokatalis

TiO₂ dan Keberadaan Ion Logam Cu (II) terhadap Fotodegradasi Amoksisilin

Hasil kajian orientasi tersebut menunjukkan bahwa penyinaran dengan dan tanpa penambahan fotokatalis TiO₂ dapat menurunkan konsentrasi amoksisilin. Penurunan konsentrasi amoksisilin juga terjadi pada campuran larutan amoksisilin dan fotokatalis TiO₂ yang direaksikan di tempat gelap (tanpa penyinaran). Penurunan konsentrasi amoksisilin yang disinari tanpa adanya fotokatalis TiO₂ terjadi karena adanya reaksi antara amoksisilin dengan radikal •OH yang dihasilkan dari peruraian molekul H₂O setelah menyerap sinar lampu UV atau energi foton (*hν*). Reaksi penyerapan cahaya oleh H₂O selain menghasilkan elektron juga menghasilkan radikal •OH dan H⁺ yang disebut reaksi fotolisis (Burrows, dkk, 1998). Reaksi fotolisis molekul air dapat dituliskan sebagai berikut:

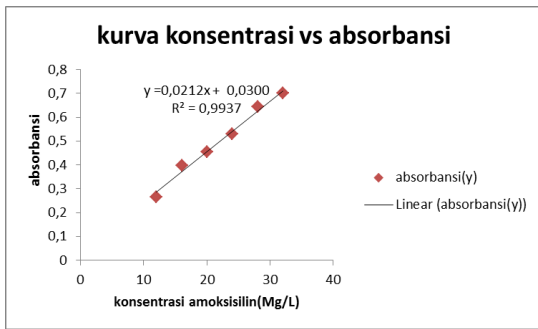


Pada gambar 1 juga dapat dilihat adanya penurunan konsentrasi amoksisilin yang cukup besar pada penambahan fotokatalis TiO₂ dengan penyinaran. Hal ini dapat terjadi karena pada saat TiO₂ dikenai sinar lampu UV maka akan dihasilkan elektron dan radikal •OH dalam jumlah yang cukup besar (Hoffmann, dkk., 1995). Sehingga proses fotodegradasi amoksisilin menjadi lebih efektif. Ion logam Cu(II) merupakan senyawa anorganik yang bisa mengalami proses fotoreduksi, sehingga keberadaannya dimungkinkan dapat memberikan pengaruh terhadap peningkatan fotodegradasi yang dikatalisis TiO₂ dopan-N. Pada gambar 1 dapat disimpulkan bahwa adanya penambahan ion logam Cu(II) ternyata memberikan hasil fotodegradasi yang lebih tinggi. Hal ini terjadi karena ion logam Cu(II) akan berikatan dengan elektron (mengalami reduksi) pada

permukaan TiO₂ sehingga dapat mencegah terjadinya penggabungan kembali antara elektron dengan radikal •OH.

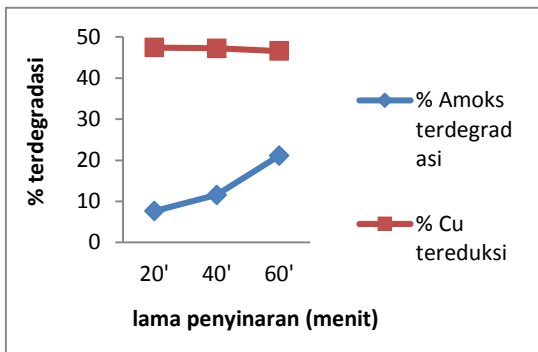
Penentuan sisa hasil amoksisilin yang tidak terdegradasi dapat dilakukan dengan Spektrofotometer UV. Hasil fotodegradasi dinyatakan dalam persen (%) amoksisilin terdegradasi yang dihitung berdasarkan selisih massa amoksisilin mula-mula dengan amoksisilin sisa. Pengukuran amoksisilin yang tidak terdegradasi diawali dengan pencarian panjang gelombang maksimal. Pencarian panjang gelombang maksimal ini bertujuan untuk menentukan panjang gelombang yang memberikan serapan yang maksimal. Dari hasil scanning didapatkan bahwa serapan amoksisilin yang maksimal ada pada panjang gelombang 230-247 nm (Gummadi dkk, 2012). Amoksisilin dapat dianalisis dengan spektrofotometer UV karena terdapat gugus kromofor dan auksokrom (Fogarty, 2013).

Pada tahap selanjutnya adalah membuat kurva baku amoksisilin. Kurva baku ini ditentukan dengan membuat larutan amoksisilin pada deret konsentrasi tertentu. Deret baku amoksisilin yang dibuat adalah 12,16,18,20,24,28, dan 32 mg/L. Masing-masing dari deret baku tersebut diukur absorbansinya menggunakan spektrofotometer UV pada panjang gelombang 228 nm. Setelah data absorbansinya didapatkan maka dibuat kurva hubungan antara konsentrasi (x) dengan absorbansi (y). Pada gambar 2 menunjukkan kurva regresi linier dari baku amoksisilin.



Gambar 2. Kurva Baku Amoksisilin

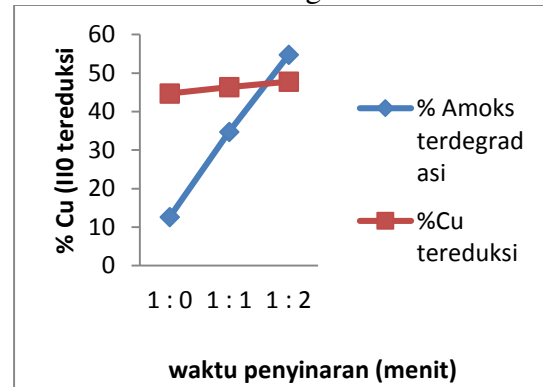
Tahap selanjutnya dilakukan perlakuan menggunakan fotokatalis TiO_2 kombinasi EDTA untuk mengetahui pengaruh lama penyinaran, pengaruh lama penyinaran fotokatalis TiO_2 dapat dilihat pada gambar 3.



Gambar 3. Pengaruh lama penyinaran katalis TiO_2 terhadap fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion logam $Cu(II)$

Pada gambar 3 terlihat bahwa semakin waktu penyinaran maka semakin besar pula proses fotodegradasi amoksisilin yang terjadi. Dengan makin lamanya penyinaran maka sinar foton yang meradiasi TiO_2 semakin banyak, sehingga hole yang bereaksi dengan H_2O untuk membentuk radikal $\bullet OH$ juga semakin banyak (Darmawan, 2013). Apabila semakin banyak radikal $\bullet OH$ yang terbentuk maka semakin besar pula amoksisilin yang bereaksi dengannya dan konsentrasi amoksisilin dalam larutan juga akan semakin menurun. Seperti halnya amoksisilin, . Semakin lamanya penyinaran maka semakin lama juga kontak antara fotokatalis TiO_2 dengan

energi foton dari sinar lampu. Dengan demikian maka semakin banyak elektron yang tersedia di permukaan fotokatalis TiO_2 . Semakin banyak elektron yang dihasilkan maka ion $Cu(II)$ lebih banyak bereaksi dengan elektron tersebut. Jika banyak ion $Cu(II)$ yang bereaksi dengan elektron maka dapat dipastikan bahwa penurunan konsentrasi ion $Cu(II)$ dalam larutan semakin meningkat.



Gambar 4. Pengaruh variasi massa TiO_2 dengan kombinasi EDTA terhadap fotodegradasi Amoksisilin dan fotoreduksi ion logam $Cu(II)$

Pada gambar 4 dapat disimpulkan bahwa ada pengaruh penambahan EDTA terhadap fotokatalis TiO_2 dalam mendegradasi amoksisilin. Hal ini dapat dilihat dari hasil perbandingan massa katalis tersebut yaitu semakin besar konsentrasi EDTA yang digunakan maka persen amoksisilin yang terdegradasi semakin banyak dibandingkan dengan TiO_2 tanpa penambahan EDTA (1 : 0). Penambahan EDTA dapat meningkatkan jumlah amoksisilin yang terdegradasi, hal ini karena senyawa EDTA berfungsi sebagai hole scavenger yang mengikat elektron pada pita konduksi sehingga terjadi pemisahan muatan, karena adanya pemisahan muatan menyebabkan terbentuknya radikal $\bullet OH$ dan reaksi secara fotokimia oleh sinar foton, sehingga radikal yang terbentuk dapat juga menghambat terjadinya rekombinasi (Permatasari dkk 2015). Pada gambar 4 hasil fotoreduksi ion logam

Cu(II) juga mengalami peningkatan seiring dengan meningkatnya jumlah massa EDTA yang digunakan. Hal ini terjadi karena penambahan massa EDTA yang menigkat sehingga semakin banyak EDTA yang dapat berikatan dengan ion Cu(II) dan akan membentuk kompleks dengan ion Cu(II), EDTA akan menghambat terjadinya rekombinasi electron-hole, sehingga banyak elektron yang sampai ke permukaan katalis dan menyebabkan ion Cu(II) lebih banyak tereduksi. Penambahan EDTA dapat meningkatkan proses fotoreduksi ion Cu(II) juga didukung dengan penelitian Haris dkk., (2007) yang menyatakan bahwa elektrolisis tanpa penambahan pengompleks mempunyai nilai potensial katoda sebesar + 0,340 volt, sedangkan nilai potensial katoda untuk elektrolisis dengan penambahan pengompleks EDTA sebesar +0,895 V. Nilai potensial katode degan pengompleks apabila dibandingkan dengan nilai potensial katoda tanpa pengompleks, menjadi lebih tinggi dan menunjukkan bahwa kemampuan reduksi ion tembaga dengan adanya pengompleks menjadi lebih besar, hal ini berpengaruh pada harga potensial sel.

SIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian ini dapat diambil kesimpulan adanya pengaruh lama penyinaran dan perbandingan senyawa Ethylendiaminetetraacetic Acid (EDTA) dan katalis TiO₂ terhadap fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion Cu (II). Kondisi reaksi yang menghasilkan proses fotodegradasi amoksisilin dan fotoreduksi ion Cu (II) paling optimum yaitu lama penyinaran 60 menit dan perbandingan TiO₂ dan EDTA adalah 1 : 2 .

DAFTAR PUSTAKA

Burrows, H. D., Ernestova, L. S., Kemp, T. J., Skurlatov, Y., I., Purmal, A.

P., & Yermakov, A. N. 1998. Kinetics and mechanism of photodegradation of chlorophenol. *J. Sci. & Techn. Lett.* 23, 4285-4299.

Halling-Sorensen, B., Nors-Nielsen, S., Lanzky, P. F., Ingerslev, F., Holten-Lützhøft, H. C., dan Jørgensen, S. E. 1998. Occurrence, Fate, and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment. *Chemosphere.* 36. (2) : 357–393.

Haris, A., Widodo, S.D., Yunita, L. 2007. Pengambilan Tembaga dari Batuan Bornit (Cu₅FeS₄) Variasi Rapat Arus dan pengkompleks EDTA Secara Elektrokimia. *Journal Student Kimia Analysis Vol. X.* No.2 tahun 2007.

Hoffmann, M. R., Martin, S. T., Choi, W., dan Bahnemann, D. W. 1995. Environmental Applications of Semiconductor Photocatalysis. *Chem. Rev.* 95 : 69-96

Pallar, H. 1994. *Pencemaran dan Toksikologi Logam Berat.* Jakarta : Rhineka Cipta.

Perdana, D. N., Wardhani, S., Khunur, M. 2014. Pengaruh Penambahan Hidrogen Peroksida (H₂O₂) Terhadap Degradasi Methylene Blue Dengan Menggunakan Fotokatalis ZnO-Zeolit. *Kimia Student Journal. Vol. 2* : 576-582.

Permatasari, S, O., Wardhani S., Darjito.2015. Studi Pengaruh Penambahan H₂O₂ Terhadap Degradasi *Methyl Orange* Menggunakan Fotokatalis TiO₂-N. *Kimia Student Journal. Vol.1* : 661-667.

Riyani, K., Tien, S., Dian W. D. 2012. Pengolahan Limbah Cair Batik Menggunakan Fotokatalis TiO₂ Dopan-N dengan Bantuan Sinar Matahari. *Kimia Student Journal.* 5: 581-587.

Slamet, S. R., Danumulyo W. 2003.
Pengolahan Limbah Logam Berat
Chromium Cr(VI) dengan
Fotokatalis TiO₂. *Makara
Teknologi* Vol. 7. 1 April 2003.