

DEGRADASI METHYL ORANGE DENGAN TiO₂-N/BENTONIT**KAJIAN : KOMPOSISI N PADA KOMPOSIT TiO₂-N/BENTONIT, SUMBER SINAR, DAN VOLUME H₂O₂****Oktaria Ardika Putri, Sri Wardhani*, Rachmat Triandi Tjahjanto***Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya
Jl. Veteran Malang 65145**Alamat korespondensi, Tel : +62-341-575838, Fax : +62-341-575835
Email: wardhani@ub.ac.id**ABSTRAK**

Fotokatalis merupakan material semikonduktor yang mampu mempercepat laju reaksi oksidasi maupun reduksi melalui reaksi fotokimia. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh variasi komposisi N pada komposit TiO₂-N/Bentonit, pengaruh variasi volume penambahan H₂O₂ 30%, serta pengaruh lama penyinaran terhadap penurunan konsentrasi zat warna *methyl orange* 10 mg/L. Karakterisasi fotokatalis dilakukan dengan menggunakan spektroskopi FTIR, UV- Vis *Diffuse Reflectance*, dan *particle size analyzer*. Penentuan konsentrasi *methyl orange* hasil penurunan konsentrasi diukur dengan spektrofotometer UV- Vis pada panjang gelombang 464,3 nm. Jumlah N yang diimpregnasi pada TiO₂/N dilakukan perbandingan mol TiO₂:urea 10:0,5; 10:1,0; 10:1,5; 10:2,0; dan 10:2,5. Variasi volume penambahan H₂O₂ 30% adalah 0, 0,25; 0,5; 0,75; dan 1,0 mL. Uji aktivitas fotokatalis dilakukan menggunakan 50 mg komposit TiO₂-N/Bentonit dalam 25 mL *methyl orange* 10 mg/L pada kondisi sinar matahari dan sinar UV (352 nm) selama tiga jam. Hasil karakterisasi menunjukkan penambahan dopan N menyebabkan peningkatan ukuran partikel dan penurunan *band gap* TiO₂-N/Bentonit sebesar 0,04 eV. Spektra IR menunjukkan adanya vibrasi N pada bilangan gelombang 1519,30-1519,80 cm⁻¹. Hasil penelitian menunjukkan komposisi TiO₂:urea 10:2,0 paling optimum pada kondisi sinar matahari dengan penurunan konsentrasi sebesar 81,39%. Volume penambahan optimum 0,75 mL H₂O₂ 30% dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitik menjadi 99,55%. Variasi lama penyinaran berbanding lurus dengan degradasi *methyl orange*. Lama penyinaran optimum pada 180 menit dengan sinar matahari dan sinar UV.

Kata kunci : fotokatalis, H₂O₂ , lama penyinaran, matahari, *methyl orange*, TiO₂-N/Bentonit**ABSTRACT**

Photocatalyst is a material semiconductor that can accelerate the rate of oxidation and reduction reactions through a photochemical reaction. The purposes of this study are determine effect of variation N in TiO₂-N/Bentonite, effect of volume variation of H₂O₂ 30%, and effect of time irradiation to the degradation of methyl orange 10 mg/L. Photocatalyst characterizations by FTIR, UV Visible Diffuse Reflectance, and Particle Size Analyzer. The concentration of methyl orange after degradation is determined by spectrophotometer UV Visible at 464, 3 nm. Synthesis TiO₂-N is performed with the mole ratio of TiO₂:urea 10:0,5; 10:1,0; 10:1,5; 10:2,0; and 10:2,5. Volume variation of H₂O₂ 30% are 0; 0,25; 0,5; 0,75; and 1,0 mL. Photocatalytic activity test is performed using 50 mg of composite TiO₂-N/Bentonite in 25 mL methyl orange 10 mg/L with sun light and UV rays (352 nm) as a source of photon energy in 3 hours irradiation. The results are showed that addition N increase the particle size of TiO₂ and band gap energy decrease 0,04 eV. IR vibration is showed characteristic of N in TiO₂ at wave number 1510,30-1519,80 cm⁻¹. The results are showed optimum composition of TiO₂: urea 10: 2,0 in sun rays condition with concentration decrease methyl orange is 81,39%. Addition 0,75 mL H₂O₂ 30% can increase photocatalytic up to 99,55%. Optimum irradiation is 180 minutes in UV rays and 180 sun rays.

Keywords : Photocatalyst, H₂O₂, time irradiation, sun rays, methyl orange, TiO₂-N/Bentonite.**PENDAHULUAN**

Zat warna *methyl orange* dari buangan industri tekstil merupakan pencemar *non biodegradable* yang memiliki gugus senyawa azo (-N=N-). [1] Fotokatalisis merupakan salah

satu metode yang sangat ekonomis yang banyak diusulkan dalam penanganan limbah, dikarenakan pada metode ini dapat digunakan sinar matahari. Pada proses fotokatalis digunakan TiO_2 sebagai semikonduktor.[2] Pada penelitian sebelumnya, dibuktikan adanya peningkatan absorpsi yang kuat pada TiO_2 yang telah didoping oleh N, dikarenakan N mampu menurunkan energi band gap.[3][4] Penelitian sebelumnya juga membuktikan adanya penambahan H_2O_2 dapat meningkatkan konsentrasi radikal hidroksil, sehingga dapat terjadi pemisahan muatan elektron (e^-) dan hole.[5] Penelitian ini mengkaji pengaruh konsentrasi N terhadap penurunan konsentrasi dari zat warna *methyl orange*, lama penyinaran, dan pengaruh dari penambahan H_2O_2 terhadap penurunan konsentrasi zat warna *methyl orange* menggunakan komposit TiO_2 -N/Bentonit.

METODA PENELITIAN

Bahan dan Alat

Bahan-bahan yang dibutuhkan dalam penelitian ini yaitu Na-Bentonit, TiO_2 (*pharmacy grade anatase phase Merck*), air terdemineralisasi, AgNO_3 0,05 M, HCl (32%, bj = 1,2 g/mL), akuades, urea p.a, etanol 96%, NaOH 40%, zat warna *methyl orange*, H_2O_2 30%.

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini yaitu peralatan gelas, cawan porselen, mortar dan pestle, ayakan berukuran 150 dan 200 mesh, oven *Fischer scientific Isotemp* 655 F, desikator, *Furnace* 1000, neraca analitik *Mettler* PE 300, shaker *Wiseshake* SHO-2D, motor rotary *Thermo Scientific*, magnetic stirrer, kertas saring, sonikator *Branson* 2210, spektrofotometer UV-Vis *Genesys* 10S, UV-Vis *Diffuse Reflectance*, spektrometer IR *Shimadzu*, particle size analyzer *Cilas*, reaktor 40 cm x 40 cm x 40 cm (lampu UV merk *Sankyo* 10 watt λ 352 nm), labu kjeldhal, unit destilasi dan buret 50 mL.

Uji Pengaruh Pada TiO_2 -N/Bentonit Terhadap Degradasi *Methyl Orange*

Larutan *methyl orange* 10 mg/L sebanyak 25 mL ditambah 50 mg komposit TiO_2 -N/Bentonit. Uji variasi komposisi N dilakukan dengan komposit TiO_2 -N/Bentonit berbagai variasi. Uji lama penyinaran dilakukan dengan komposit TiO_2 -N/Bentonit, variasi 10:2 dengan variasi lama penyinaran (30, 60, 90, 120, 150, 180) menit. uji pengaruh volume larutan H_2O_2 , dilakukan dengan menambahkan H_2O_2 30% sebanyak 0; 0,25mL; 0,5 mL; 0,75 mL;1 mL, ditambahkan dengan aquades sebanyak (1; 0,75; 0,5; 0,25) mL. Uji pengaruh variasi N dan uji pengaruh volume larutan H_2O_2 , suspensi disinari dengan sinar UV pada

fotoreaktor selama tiga jam. Perlakuan yang sama dilakukan pada sinar matahari dan kondisi gelap.

HASIL DAN PEMBAHASAN

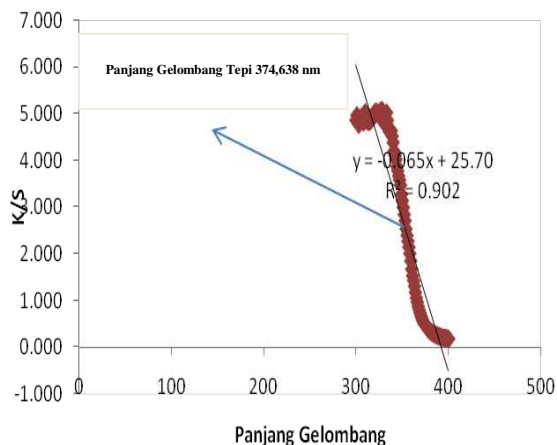
Impregnasi TiO₂-N pada Bentonit

Komposit TiO₂-N/Bentonit dibuat dengan cara mengembangkan (impregnasi) fotokatalis TiO₂-N pada mineral bentonit yang telah diaktivasi. Adanya suatu mineral dapat meningkatkan luas permukaan suatu fotokatalis.[6]

Pencampuran TiO₂-N dan bentonit menghasilkan suspensi berwarna putih dan bau seperti pelarut organik. Proses pemanasan dengan kalsinasi dilakukan pada temperatur 500°C dengan tujuan agar TiO₂-N terikat lebih kuat pada permukaan bentonit, sebagaimana yang disebutkan dalam literatur.[7]

Karakterisasi Energi Celah Pita dengan *UV-Vis Diffuse Reflectance Spectrometer*

TiO₂ yang didopan oleh N menunjukkan adanya penurunan energy dari TiO₂ murni, meski penurunannya kecil, yakni dari 3,35 eV menjadi 3,34 eV. Kemudian pada TiO₂-N dilakukan pengembangan pada mineral bentonit, pengembangan pada mineral bentonit ini diharapkan dapat menurunkan energy celah pita daripada TiO₂ yang tidak dieembangkan, hasilnya adalah energi celah pita menurun menjadi 3,31eV.



Gambar 1

TiO ₂ -N	10%	50%	90%
(10:0,5)	0,36	21,95	141,58
(10:1)	0,68	3,34	30,22
(10:1,5)	1,03	7,77	223,47
(10:2)	1,07	40,96	112,27
(10:2,5)	47,99	127,20	359,96

Tabel 1

Gambar 1. Kurva hubungan panjang gelombang dan K/S

Pada Gambar 1 dapat dilihat adanya hubungan panjang gelombang dan K/S, K merupakan koefisien absorpsi dan S merupakan koefisien hamburan dengan satuan cm⁻¹[9]. Pada pengujian menggunakan UV-Vis DRS, tepatnya pada panjang gelombang 374,638 nm

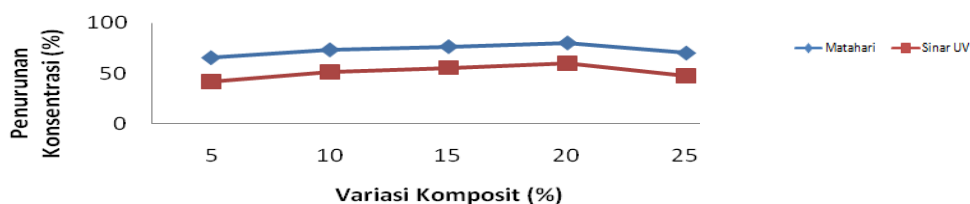
merupakan panjang gelombang tepi dari TiO₂-N/Bentonit. Panjang gelombang tersebut digunakan untuk menghitung energi *band gap*.

Karakterisasi Ukuran Partikel dengan *Particle Size Analyzer*

Pada penelitian ini, pengukuran menggunakan *particle size analyzer*, pada Tabel 1. digunakan pada rentang 0,04µm – 500,00µm/100 *classes*, pada diameter 10 %, ditunjukkan bahwa semakin banyaknya nitrogen pada TiO₂/N akan memperbesar ukuran suatu fotokatalis, dan dengan adanya pengembangan akan menambah ukuran dari suatu fotokatalis.

Uji Pengaruh Komposisi N pada Komposit TiO₂-N/Bentonit terhadap Penurunan Konsentrasi *Methyl Orange*

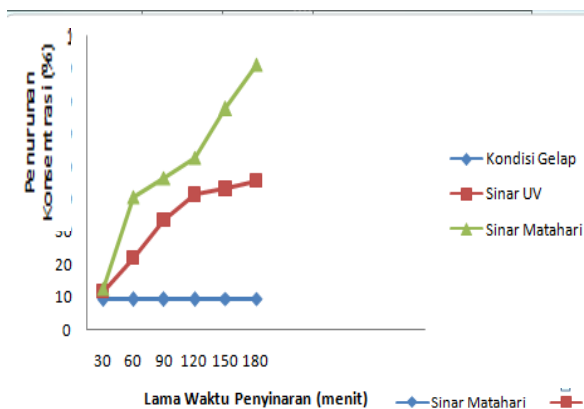
Dari Gambar 2, ditunjukkan pada perbandingan TiO₂ : Urea pada bentonit paling baik adalah variasi 10:2. Pada sinar UV dan sinar matahari, dicapai penurunan konsentrasi optimum sebesar 60,45% dan 80,39%. Dalam penelitian ini penurunan konsentrasi kembali meningkat pada variasi 25%, hal ini dikarenakan pada penambahan jumlah dopan berlanjut dapat terjadi rekombinasi dari *hole*-elektron yang dapat menurunkan laju fotodegradasi [9]



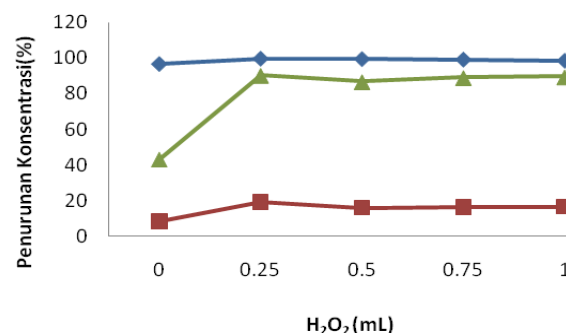
Gambar 2. Pengaruh komposisi N pada komposit TiO₂-N/Bentonit terhadap penurunan konsentrasi *imethyl orange* 20 mg/L pH=7 dengan massa fotokatalis 50 mg; lama penyinaran 180 menit

Uji Pengaruh Lama Penyinaran terhadap Penurunan Konsentrasi *Methyl Orange*

Uji pengaruh lama penyinaran ini menunjukkan bahwa semakin lama waktu yang digunakan dalam penyinaran, baik menggunakan sinar UV maupun sinar matahari, akan memperbesar penurunan konsentrasi *methyl orange*. Peningkatan waktu yang sebanding dengan energi foton yang terserap oleh fotokatalis [8] Pada pengamatan dengan mata telanjang, hasil dari penelitian ini terlihat bahwa *methyl orange* yang semula berwarna oranye terlihat semakin bening dengan adanya penambahan waktu penyinaran.



Gambar 3

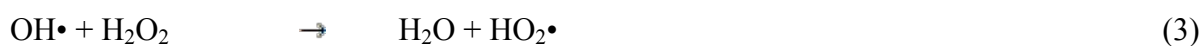


Gambar 4

Gambar 3. Diagram variasi lama penyinaran pada 25 mL *methyl orange* 20 mg/L dengan massa komposit TiO₂-N/Bentonit 50 mg.

Uji Pengaruh Larutan H₂O₂ 30% dan H₂O terhadap Penurunan Konsentrasi *Methyl Orange*

Berdasarkan Gambar 4, adanya penambahan H₂O₂ 30% berisi komposit TiO₂-N/Bentonit, memperbesar penurunan konsentrasi *methyl orange* dengan bantuan sinar UV, sinar matahari, dan kondisi gelap. Penurunan konsentrasi terletak pada perbandingan H₂O₂ 30% dan H₂O 0,25ml:0,75ml, dikarenakan semakin banyak H₂O₂, maka akan semakin banyak pula •OH yang dihasilkan, yakni melalui reaksi reduksi pada pita konduksi (Reaksi 1 dan 2), dimana semakin banyaknya •OH yang dihasilkan, maka penurunan konsentrasi dari *methyl orange* akan semakin besar, kemudian untuk perbandingan volume larutan 0,5:0,5 ; 0,75:0,25; dan 1:0 terjadi peningkatan konsentrasi, hal ini disebabkan oleh jumlah H₂O₂ yang terlalu banyak dapat memberikan efek negatif pada pendegradasian *methyl orange* ini, yakni terbentuknya HO₂• yang memiliki kereaktifan lebih rendah dalam mendegradasi *methyl orange* dibanding •OH (3) dan sebagian membentuk kembali H₂O₂ (4). HO₂• dapat menghalangi transfer dari energy foton, hal ini dikarenakan HO₂• merupakan molekul gas yang tidak terlarut, dan hanya pada permukaan fotokatalis.[5]



KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan maka dapat ditarik kesimpulan bahwa adanya dopan N pada TiO_2 mengakibatkan kemampuan fotokatalis. Semakin banyaknya jumlah dopan N yang ditambahkan maka ukuran suatu fotokatalis akan semakin besar. Pada penambahan dopan N kedalam TiO_2 , penurunan konsentrasi paling besar pada komposisi $\text{TiO}_2\text{:N}$ 10:2 namun apabila penambahan dopan N diperbesar, maka akan meningkatkan konsentrasi *methyl orange*. Lama penyinaran pada campuran fotokatalis $\text{TiO}_2\text{-N/Bentonit}$ dan *methyl orange* sebanding dengan besar penurunan konsentrasi *methyl orange*. Perbandingan larutan H_2O_2 30% dengan H_2O , optimum terdapat pada perbandingan volume larutan 0,25 : 0,75.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ditujukan kepada Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Brawijaya serta staff instrument dan laboran labolatorium anorganik, analitik, fisik, dan organik.

DAFTAR PUSTAKA

1. Mouli,P.C, Mohan, S.V dan Reddy, S.J. (2004). *Electrochemical Processes for the Remediation and Contaminated Soil: Emerging Technology*. Journal of scientific and Industrial Research, 63, pp 11-19
2. Gunzaluardi, J, 2000. *Fotoelektroanalisis untuk Detoksifikasi Air, Prosiding*. Seminar Nasional Elektrokimia, 1-21
3. Asahi, R, Morikawa, T., Ohwaki, T., Aoki, K., & Taga, Y. 2001 . *Visible Light Photocatalysis in N-Doped Titanium Dioxide* . Science, 293. 269-271.
4. Diwald, O., Thompson, T.L., Zubkov, T., Walck, S.D., & Yates, J.T. 2004. *Photochemical Activity of Nitrogen - Doped Rutile $\text{TiO}_2(110)$ in Visible Light*. J Phys. Chem. B, 108(19), 6004-6008
5. Palupi E., 2006, *Degradasi Methylene Blue Dengan Metode Fotokatalisis dan Fotoelektrokatalisis Menggunakan Film TiO_2* , Skripsi Departemen FMIPA Institut Pertanian, Bogor.
6. Zhang, H., Yang, Z., Zhang, X., Maio, N., 2014, *Photocatalytic Effect of Wool Fibers Modified with Soley TiO_2 Nanoparticles and N-doped TiO_2 Nanoparticles by Using Hydrothermal*, Elsivier, Vol. 254, 106-114

7. Febriana, I. D., 2011, *Pengaruh pH Awal Larutan Methyl Orange pada Degradasi Zat Warna Methyl Orange dengan Fotokatalis Bentonit-TiO₂*, Jurnal, FMIPA, Universitas Brawijaya
8. Anwar, D.I., 2011, *Sintesis Komposit Fe-TiO₂-SiO₂ sebagai Fotokatalis pada Degradasi Erioyl Yellow*, Tesis, FMIPA, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta
9. Cheng, X., Yu, X., Xing, Z., Yang, L., 2012, *Synthesis and Characterization of N-Doped TiO₂ and its Enhanced Visible-Light Photocatalytic Activity*, 1878-5352.