

**INKORPORASI TITANIA PADA MATRIKS SILIKA DAN PENGARUHNYA
TERHADAP AKTIVITAS FOTOKATALITIK TITANIA
PADA DEGRADASI METIL ORANYE**
*(Incorporation of Titania into Silica Matrix and Its Effect Toward the Photocatalytic
Activity of Titania on the Degradation of Methyl Orange)*

Eko Sri Kunarti, Endang Tri Wahyuni dan Indi Annisa Hapsari

Jurusan Kimia FMIPA-UGM Yogyakarta

E-mail: eko_kunarti@ugm.ac.id

Diterima: 6 Desember 2010

Disetujui: 16 Februari 2011

Abstrak

Telah dilakukan preparasi dan karakterisasi nanokristal titania terinkorporasi silika (nanokomposit titania-silika) disertai dengan pengujian aktivitas fotokatalitiknya untuk degradasi metil oranye. Preparasi dilakukan melalui proses sol-gel pada suhu kamar diikuti dengan perlakuan termal pada temperatur 500°C. Pengaruh penambahan silika terhadap karakter nanokomposit yang terbentuk telah dikaji dalam penelitian ini. Karakterisasi dilakukan dengan metode difraksi sinar-X, spektrometri inframerah, spektrometri fluoresensi sinar-X serta spektrometri uv-vis difusi reflektansi. Proses degradasi dilakukan dengan sistem *batch* di dalam reaktor tertutup yang dilengkapi dengan lampu UV 40 watt. Hasil penelitian menunjukkan bahwa penambahan matriks silika menyebabkan pembentukan ikatan *cross-linking* Si-O-Ti dan *oxygen vacancies* dalam titania. Inkorporasi titania pada matriks silika dapat meningkatkan stabilitas dan energi celah pita serta sifat fotokatalisis titania bebas.

Kata kunci : sol-gel, inkorporasi, nanokomposit, TiO₂-SiO₂, degradasi, metil oranye

Abstract

Preparation and characterisation of nanocrystalline silica-incorporated titania (titania-silica nanocomposite) have been carried out followed by its photocatalytic activity test for degradation of methyl orange. The preparation was conducted via sol-gel processing followed by thermal treatment at a temperature of 500°C. Effect of the silica addition on the nanocomposite's character were studied. Characterization was performed by x-ray diffraction method, infrared spectrometry, X-ray fluorescence spectrometry, and diffuse reflectance UV-visible spectrometry. The photoactivity test of nanocomposites was carried out in a closed reactor equipped with UV light. Results showed that the addition of silica promotes the formation of Si-O-Ti cross-linking bonds and oxygen vacancies in titania. Incorporation of titania into silica matrix enhanced the stability, increased the band gap energy and increased the photocatalytic activity of free titania.

Keywords: sol-gel, incorporation, nanocomposite, TiO₂-SiO₂, degradation, methyl orange

PENDAHULUAN

Titania (TiO₂) telah dikenal sebagai semikonduktor fotokatalis, yaitu bahan yang dapat meningkatkan laju reaksi oksidasi maupun reduksi yang diinduksi oleh cahaya. Sifat fotokatalitik titania tersebut dipengaruhi

oleh beberapa faktor seperti struktur kristal, luas permukaan, porositas, bentuk dan distribusi pori (Corma, 1997). Titania dikenal memiliki 3 fasa kristal yaitu *brookite*, *anatase* dan *rutile*. Titania jenis anatase memiliki fotoaktivitas yang lebih tinggi daripada *brookite* dan *rutile* (Corma, 1997). Beberapa penelitian

telah dilakukan untuk mengkaji efektivitas fotokatalis titania dalam reaksi fotodegradasi polutan berbahaya menjadi senyawa yang aman dan mudah penanganannya.

Titania dalam penggunaannya sebagai fotokatalis masih memiliki beberapa keterbatasan seperti luas permukaan, kekuatan mekanik dan ketahanan sintering yang relatif rendah. Untuk mengatasi keterbatasan tersebut dapat dilakukan antara lain dengan cara mengembangkan atau menginkorporasikan titania pada matriks berpori seperti zeolit, lempung atau polimer (Takeda *et al.*, 2001), maupun membentuknya menjadi suatu komposit dengan oksida logam. Selain menjadi material yang lebih kuat secara mekanik dan tahan terhadap sintering, inkorporasi dan pembentukan komposit tersebut juga berfungsi untuk membatasi pertumbuhan kristal oksida yang ada di dalamnya sehingga ukuran partikelnya menjadi lebih kecil sehingga dapat meningkatkan harga energi celah pita (E_g) TiO_2 . Dalam komposit, titania membentuk *framework* dengan matriks sehingga lebih stabil dan fotokatalis tersebut mudah dipisahkan untuk tujuan *recovery* ataupun regenerasi.

Inkorporasi TiO_2 ke dalam bahan matriks telah banyak dilaporkan, seperti lempung (Ooka *et al.*, 2003, Ding, *et al.*, 2008) dan zeolit (Alvaro *et al.*, 2005, Tanaka *et al.*, 2006; Huang *et al.*, 2008). Beberapa peneliti juga telah mendemonstrasikan bahwa komposit titania dengan oksida logam maupun sulfida logam seperti $Al_2O_3-TiO_2$, ZrO_2-TiO_2 , $CdS-TiO_2$, $ZnO-TiO_2$, $PbS-TiO_2$, WO_3-TiO_2 dan SiO_2-TiO_2 memiliki fotoaktivitas yang lebih bagus dari pada titania murni (Vogel *et al.*, 1994; Sukharev dan Kershaw, 1996). Peningkatan aktivitas tersebut kemungkinan disebabkan oleh meningkatnya konsentrasi reaktan di sekitar situs aktif dan meningkatnya sifat adsorpsi (Cheng, *et al.*, 2003).

Pada makalah ini disajikan preparasi nanokristalin titania terinkorporasi pada silika (nanokomposit titania-silika) melalui reaksi hidrolisis dan polikondensasi titanium tetraisopropoksida dan tetraetilortosilikat dengan menggunakan metode sol-gel. Kajian

pengaruh penambahan matriks silika terhadap karakter dan aktivitas fotokatalitik titania pada degradasi metil oranye juga dibahas dalam makalah ini.

Metode Penelitian

Bahan dan Alat Penelitian

Semua bahan kimia yang digunakan dalam penelitian ini berkualitas analitik yang meliputi titanium tetraisopropoksida (TTIP) 98% (*E-Merck*), tetraetilortosilikat (TEOS) 97% (*Aldrich*), Asam klorida (*E-Merck*), etanol (*E-Merck*), dan akuades (Laboratorium Kimia Analitik FMIPA UGM), kertas indikator universal (*E-Merck*) dan kertas saring Whatman 42 (*E-Merck*).

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari peralatan gelas laboratorium, timbangan analitik (Mestler AE 160), alat penggerus (lumpang dan mortar), seperangkat penyaring Buchner, tungku pembakaran (Carbolite S302RR), oven (Fischer Scientific), satu set plat pengaduk magnet, satu set alat sentrifugasi (Sigma tipe 101), pengaduk magnet, desikator, pompa vakum dan pH meter Orion model 290 A. Alat-alat analisis yang digunakan adalah satu set reaktor yang dilengkapi dengan lampu UV tipe *black light blue* (BLB) 40 Watt, 220 Volt, spektrofotometer inframerah Shimadzu FTIR-8201PC, difraktrometer sinar-X tipe XRD 6000 Shimadzu, spektrofotometer UV-Vis Genesys 20, spektrofotometer UV-Vis tipe UV-1700 dan spektrometri fluoresensi sinar-X EG&G ORTEG 7001.

Prosedur Penelitian

Preparasi nanokomposit TiO_2-SiO_2

Sejumlah nanokomposit $xSiO_2-(1-x)TiO_2$ (x =mol%) dipreparasi dengan metode sol-gel menggunakan titanium (IV) tetraisopropoksida (TTIP) sebagai prekursor titania dan tetraetil ortosilikat (TEOS) sebagai prekursor silika dengan prosedur sebagai berikut. Larutan TEOS dalam air-alkohol dan HCl sebagai katalis (dengan perbandingan mol 1:3:4:0,05) diultrasonikasi selama 30 menit kemudian direaksikan dengan larutan TTIP dalam air, alkohol dan HCl (dengan perbandingan mol

1:3:4:0,05) yang telah diultrasonikasi 30 menit, dengan rasio molar Si/Ti yang bervariasi (0, 50, 60, 70 dan 80 mol%). Reaksi dilakukan dengan cara ultrasonikasi selama 1 jam sampai terbentuk larutan homogen. Larutan homogen kemudian didiamkan sampai terbentuk hidrogel. Hidrogel dikeringkan dalam oven selama 1 jam diikuti perlakuan termal pada temperatur 500°C selama 4 jam. Hasil perlakuan termal berupa *xerogel* nanokomposit titania-silika. Kristal nanokomposit titania-silika kemudian disimpan dalam desikator untuk selanjutnya dilakukan karakterisasi.

Karakterisasi nanokomposit titania-silika

Karakterisasi dilakukan dengan metode difraksi sinar-X dan spektrometri inframerah guna identifikasi dan penentuan struktur nanokomposit (mengetahui kekristalan dan menentukan gugus-gugus fungsional yang ada dalam komposit). Komposisi kimia nanokomposit ditentukan dengan penentuan jumlah kandungan titanium yang ada dalam komposit dengan metode spektroskopi fluoresensi sinar-X. Di samping itu penentuan energi celah pita (E_g) dari titania dalam nanokomposit dan titania bebas juga dilakukan dengan cara membuat spektra uv-vis difusi reflektansi pada panjang gelombang 800-250 nm.

Uji fotoaktivitas nanokomposit titania-silika

Pengujian aktivitas nanokomposit dilakukan pada reaksi fotodegradasi metil oranye. Proses fotodegradasi dilakukan dengan sistem *batch* dalam reaktor yang dilengkapi dengan lampu UV 40 watt dan plat pengaduk magnet. Untuk itu campuran yang terdiri dari sejumlah larutan metil oranye dan nanokomposit titania-silika dalam erlenmeyer dimasukkan ke dalam reaktor dan disinari dengan lampu UV sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama waktu tertentu. Pemisahan filtrat dari padatan dilakukan dengan cara sentrifugasi selama 30 menit dan penyaringan dengan kertas saring Whatman. Filtrat yang diperoleh dianalisis dengan menggunakan spektrometer

UV-Vis untuk menentukan konsentrasi metil oranye sisa. Absorbansi diukur pada panjang gelombang 464 nm.

Langkah yang sama dilakukan untuk mempelajari pengaruh waktu penyinaran terhadap efektivitas fotodegradasi metil oranye. Pengaruh waktu penyinaran dilakukan pada waktu yang bervariasi yaitu 1, 2, 3, 4, 5 dan 10 jam menggunakan 40 ml larutan metil oranye 25 mg/L dengan massa fotokatalis 0,2 mg. Sebagai perbandingan, dengan prosedur yang sama dilakukan pula uji fotoaktivitas titania bebas (tanpa matriks silika).

Hasil dan Pembahasan

Preparasi nanokomposit TiO_2 - SiO_2

Preparasi ini dilakukan dengan tujuan untuk mendapatkan fotokatalis titania dengan aktivitas tinggi dan stabil secara kimia. Hal itu dapat diperoleh jika titania dibentuk nanokomposit dengan cara menambahkan silika sebagai matriks. Untuk itu dilakukan preparasi nanokomposit titania-silika secara *in-situ* melalui proses sol gel menggunakan prekursor tetraalkil ortosilikat sebagai sumber silika dan titanium tetraisopropoksida sebagai sumber titania. Keberhasilan preparasi ini dibuktikan dengan menganalisis jumlah titanium yang dapat diakomodasi oleh silika pada nanokomposit. Selain itu dilakukan karakterisasi untuk identifikasi struktur dan sifat fisik nanokomposit.

Proses sol-gel merupakan serangkaian proses yang berlangsung melalui hidrolisis, kondensasi, polikondensasi dan polimerisasi membentuk gel yang merupakan polimer. Prekursor silika secara simultan mengalami hidrolisis dan kondensasi dengan prekursor titania melalui mekanisme terkatalisis asam. Selanjutnya mengalami transisi dari sol ke pembentukan hidrogel berwarna putih transparan, yang setelah proses pengeringan dan perlakuan termal pada temperatur 500°C menghasilkan material nanokomposit titania-silika yang berupa *xerogel*. Pertumbuhan titania pada silika kemungkinan terjadi melalui *anchoring* fasa TiO_2 melalui ikatan *cross-linking* Ti-O-Si.

Sifat dan struktur nanokomposit sangat dipengaruhi oleh komposisinya yaitu jumlah titania yang dapat terinkorporasi pada nanokomposit. Tabel 1 menyajikan hasil analisis kandungan Ti dalam nanokomposit titania-silika yang terbentuk dari berbagai rasio Ti/Si. Hasil analisis pada Tabel 1 menunjukkan bahwa hampir titanium yang digunakan dalam penelitian ini dapat terinkorporasi dalam matriks silika. Hal ini membuktikan bahwa selama proses sol-gel, polimerisasi titania berlangsung secara simultan dengan polimerisasi silika, dengan demikian hampir semua titania dapat terakomodasi di dalam struktur silika.

Tabel 1 Data analisis kandungan titanium dalam nanokomposit TiO₂-SiO₂ pada berbagai rasio molar Ti/Si

Ti/Si (%)	Jumlah titanium terinkorporasi pada matriks silika (%)
20	17,64
30	32,12
40	38,75
50	42,59

Karakterisasi struktur nanokomposit

Karakterisasi terhadap struktur nanokomposit hasil sintesis dilakukan dengan menggunakan metode spektrometri inframerah. Spektra inframerah silika, titania dan nanokomposit titania-silika diperlihatkan pada Gambar 1.

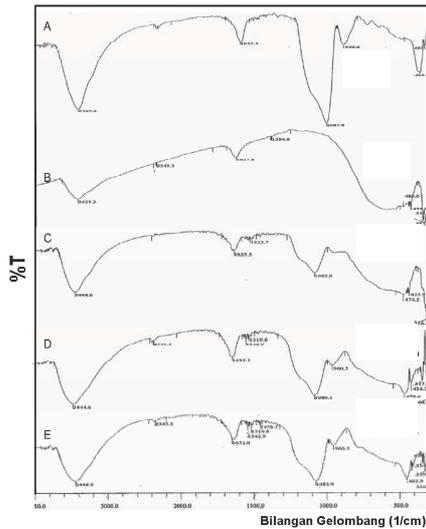
Spektra pada Gambar 1 menunjukkan adanya pita karakteristik silika yaitu ikatan Si-OH dan Si-O-Si. Pita serapan pada frekuensi 3429,2 cm⁻¹ merupakan vibrasi ulur -OH dari silanol (Si-OH) sedangkan pada bilangan gelombang 1635,5 cm⁻¹ muncul serapan yang menunjukkan vibrasi -OH dari molekul air yang terikat. Pita serapan yang kuat pada frekuensi 1087,8, 956,6 dan 462,9 cm⁻¹ masing-masing merupakan vibrasi ulur asimetris Si-O dari siloksan (Si-O-Si), vibrasi ulur Si-O dari silanol (Si-OH) dan vibrasi tekuk Si-O dari gugus siloksan (Si-O-Si).

Dari spektra pada Gambar 1 terlihat pola serapan karakteristik TiO₂, yaitu serapan dari Ti-O yang muncul pada bilangan gelombang 2345,3 cm⁻¹ dan Ti-O-Ti pada bilangan gelombang 486,0-432,0 cm⁻¹. Pita vibrasi pada frekuensi 3425,3 cm⁻¹ merupakan OH regangan dari OH oktahedral dan atau H₂O sedangkan pada bilangan gelombang 1627,8 cm⁻¹ merupakan O-H tekuk dari H₂O.

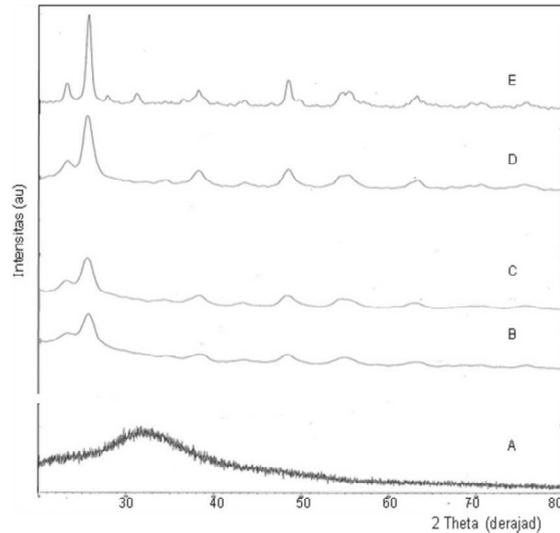
Pita lainnya yang dapat diamati dari spektra nanokomposit titania-silika yakni pada 2345 cm⁻¹ yang menunjukkan vibrasi rentangan Ti-O. Munculnya pita serapan lebar yang sangat lemah pada kisaran 960,5-424,3 cm⁻¹ mengindikasikan adanya vibrasi TiO₂ pada silika yaitu Si-O-Ti (ikatan antara Si-O dengan Ti-O). Pelebaran pita pada daerah tersebut merupakan akibat dari adanya pita serapan silanol di sekitar 960 cm⁻¹ dan akibat pergeseran pita vibrasi Si-O-Si. Di samping itu pada gambar tersebut juga dapat dilihat adanya pita vibrasi anti simetri Si-O-Si, yang mengalami pergeseran ke energi yang lebih rendah akibat dari meningkatnya interaksi antara domain silika dan titania dalam membentuk nanokomposit, yaitu pada frekuensi sekitar 1080-1084 cm⁻¹. Frekuensi ini lebih rendah dari pada yang teramati pada spektrum silika murni yaitu 1087,8 cm⁻¹. Intensitas pita serapan pada frekuensi tersebut tampak meningkat dengan bertambahnya rasio molar Ti/Si dari 20 menjadi 40%. Untuk nanokomposit TiO₂-SiO₂ dengan rasio molar Ti/Si 40 dan 50%, tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan pada spektra inframerah yang dihasilkan. Dari hasil spektra pada Gambar 1 dapat disimpulkan bahwa titania telah terinkorporasi dalam struktur matriks silika.

Karakter fasa kristal dari padatan hasil preparasi dianalisis dengan menggunakan metode difraksi sinar-X. Hasil difraksi sinar-X silika, titania dan nanokomposit titania-silika ditunjukkan pada Gambar 2.

Difraktogram pada Gambar 2 menunjukkan adanya puncak yang melebar pada sampel silika di daerah 2θ = 21,82°- 22,52°, yang mengindikasikan sifat amorf dari silika.



Gambar 1 Spektra inframerah silika (A), titania (B), titania-silika dengan rasio molar Ti/Si 20% (C), 40% (D) dan 50% (E)



Gambar 2 Pola difraksi sinar-X silika (A), titania-silika 20% (B), titania-silika 30% (C), titania-silika 40% (D) dan titanis-silika 50% (E)

Untuk sampel TiO_2 terlihat dari difraktogram bahwa TiO_2 setelah melalui perlakuan termal pada temperatur 500°C menghasilkan kristal anatase dan rutil dengan struktur anatase yang dominan, yang ditunjukkan dari puncak yang tajam pada $2\theta = 25,55^\circ$. Kemunculan fasa anatase ditandai pada puncak $d_{101} = 3,48\text{\AA}$ sedangkan fasa rutil pada $d_{110} = 3,22\text{\AA}$. Data tersebut memiliki nilai mendekati puncak anatase dan rutil pada database JCPDS yaitu $3,52$ dan $3,24\text{\AA}$. Gambar 2 juga mengindikasikan bahwa derajat kristalinitas nanokomposit cukup tinggi yang dapat diartikan bahwa nanokomposit memiliki ukuran tertentu dan seragam. Kristalinitas meningkat dengan bertambahnya rasio molar Ti/Si dari 20-40% namun peningkatan rasio molar menjadi 50% tidak menunjukkan perubahan kristalinitas.

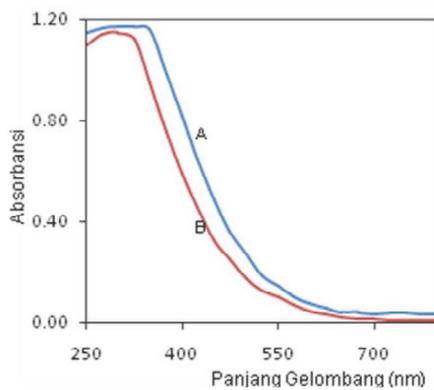
Berdasarkan persamaan Scherrer ($D = k\lambda / B\cos\theta$), ukuran kristal titania dapat ditentukan dengan menggunakan *line-width at half-maximum* puncak difraksi sinar-X pada $2\theta = 25,55^\circ$, dengan $\lambda = 0,15418$ dan $k = 0,9$.

Dari hasil analisis spektra inframerah dan difraksi sinar-X maka nanokomposit titania-silika dengan rasio molar Ti/Si 40% adalah optimum, oleh karena itu dipilih untuk dikarakterisasi sifat elektroniknya dan diuji aktivitasnya sebagai fotokatalis dalam penelitian ini.

Karakterisasi sifat elektronik fotokatalis

Gambar 3 menunjukkan spektra ultra-violet-visibel difusi reflaktansi dari titania-silika. Gambar tersebut mengindikasikan bahwa titania (40 mol%) dalam matriks silika mempunyai serapan maksimum pada 328 nm , sedangkan titania bebas memberikan serapan maksimum pada gelombang 355 nm . Hal ini menandakan terjadinya pergeseran absorbansi dari daerah ultraviolet-visibel ke ultraviolet, yang dikenal dengan pergeseran biru (Ekimov *et al.*, 1985). Pergeseran ini merupakan indikasi adanya partikel yang berukuran nano yang terbentuk karena pertumbuhan partikel TiO_2 dibatasi oleh struktur silika.

Selain dapat mengetahui adanya penurunan ukuran partikel, dari spektra tersebut juga dapat digunakan untuk menentukan harga energi *band gap* (E_g) yang merupakan karakter dari fotokatalis. Harga E_g sampel dapat dihitung dengan mengikuti persamaan E_g (eV) = $1240/\lambda$ (nm) (Zhou *et al.*, 1996). Harga E_g suatu semikonduktor yang besar menggambarkan bahwa bahan tersebut mempunyai ukuran partikel yang kecil (Brus, 1984) yang sering dikenal sebagai *quantum size effect*. Jadi dari harga E_g tersebut dapat dipastikan bahwa titania dalam nanokomposit titania-silika mempunyai ukuran partikel yang lebih kecil sehingga luas permukaannya menjadi lebih besar daripada titania bebas. Hal ini dapat dipahami, karena pertumbuhan partikel titania dalam matriks silika mengalami pembatasan oleh kerangka struktur silika.



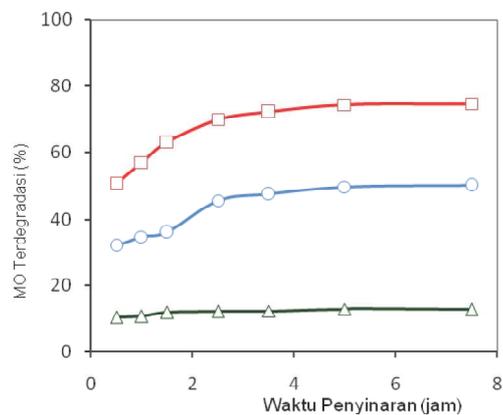
Gambar 3. Spektra difusi reflektansi uv-visibel titania (A) dan nanokomposit titania-silika dengan rasio molar Ti/Si 40% (B)

Seperti telah diketahui, bahwa harga E_g dapat meningkat karena kombinasi *quantum size effect* dan interaksi antarmuka akibat pengaruh matriks, di mana pengaruh matriks kemungkinan lebih dominan. Dalam hal ini ikatan kuat Ti-O-Si akan memodifikasi struktur elektronik atom-atom Ti dalam titania-silika dan akan meningkatkan muatan positif pada atom Ti. Akibat dari kedua pengaruh tersebut, harga E_g TiO_2 pada nanokomposit titania-silika

dapat mengalami peningkatan. Meningkatnya E_g nanopartikel TiO_2 diakibatkan oleh meningkatnya pita konduksi dan menurunnya pita valensi. Jadi sifat elektronik berubah akibat dari meningkatnya E_g . Potensial oksidasi foton yang disebabkan oleh *hole* dan potensial reduksi foton yang ditimbulkan oleh elektron akan meningkat dengan meningkatnya celah pita (*band gap*) sehingga diharapkan nanopartikel TiO_2 pada matriks SiO_2 memiliki fotoaktivitas yang tinggi.

Uji fotoaktivitas titania dalam nanokomposit

Aktivitas titania sebagai fotokatalis diuji untuk reaksi degradasi larutan metil oranye. Untuk itu telah dilakukan proses degradasi metil oranye baik tanpa maupun dengan adanya fotokatalis titania bebas dan titania dalam nanokomposit, dalam waktu yang bervariasi. Hasil pengujian disajikan sebagai gambar 4.



Gambar 4. Pengaruh waktu terhadap degradasi metil oranye tanpa dan dengan fotokatalis.

(□) titania-silika, (○) titania bebas dan (Δ) tanpa fotokatalis.

Dari gambar 4 secara umum dapat dilihat bahwa semakin lama waktu penyinaran efektivitas degradasi semakin meningkat. Degradasi yang berlangsung selama 0.5 jam sampai dengan 2.5 jam, memberikan peningkatan efektivitas yang relatif besar. Namun demikian, degradasi yang berlangsung

selama 2.5 jam sampai dengan 7.5 jam kenaikan efektivitas degradasi relatif kecil.

Lama waktu penyinaran dengan lampu UV dalam proses menggambarkan lama interaksi atau kontak antara fotokatalis dengan cahaya ($h\nu$) dan kontak antara metil oranye dengan radikal $\bullet\text{OH}$. Semakin lama waktu penyinaran maka semakin banyak energi foton yang diserap oleh fotokatalis, sehingga radikal $\bullet\text{OH}$ yang terbentuk pada permukaan fotokatalis semakin banyak. Selain itu, semakin lama waktu penyinaran berarti waktu kontak antara larutan metil oranye dengan fotokatalis juga semakin lama. Hal ini akan meningkatkan efektivitas proses degradasi metil oranye. Pada reaksi yang lebih lama lagi telah terbentuk produk yang semakin banyak. Hal ini dapat menghalangi interaksi antara metil oranye dan fotokatalis, sehingga reaksi degradasi menjadi kurang efektif. Berdasarkan data yang telah diperoleh waktu penyinaran optimum yang menghasilkan degradasi paling efektif adalah 2.5 jam.

Gambar 4 juga menunjukkan bahwa reaksi degradasi metil oranye tanpa fotokatalis dapat berjalan, meskipun relatif lambat. Dalam proses ini metil oranye setelah menyerap cahaya akan membentuk senyawa fotoaktif yang kurang stabil, sehingga senyawa ini mudah terdegradasi menjadi senyawa-senyawa yang lebih sederhana. Selain itu, metil oranye juga dapat terdegradasi oleh radikal $\bullet\text{OH}$ yang terbentuk dari molekul H_2O setelah menyerap cahaya atau foton, meskipun jumlahnya relatif sedikit.

Efektivitas degradasi terlihat meningkat cukup besar dengan penambahan fotokatalis titania bebas maupun titania dalam nanokomposit. Hal ini karena fotokatalis tersebut setelah menyerap cahaya dapat menghasilkan radikal $\bullet\text{OH}$ dalam jumlah yang lebih banyak. Lebih jauh terlihat bahwa efektivitas reaksi fotodegradasi metil oranye yang disinari dengan cahaya ultraviolet dengan fotokatalis titania dalam nanokomposit lebih tinggi bila dibandingkan dengan fotokatalis titania bebas. Hal tersebut karena titania dalam nanokomposit memiliki harga E_g lebih besar

dan memiliki kemampuan yang lebih tinggi dalam menyerap energi foton (Hoffman, *et al.*, 1995), sehingga dapat menghasilkan radikal $\bullet\text{OH}$ lebih banyak. Harga E_g yang besar juga dapat memperlambat rekombinasi *hole* dengan elektron, sehingga proses fotokatalisis lebih efektif (Hoffman, *et al.*, 1995). Selain itu, karena ukuran titania dalam nanokomposit lebih kecil atau luas permukaannya lebih besar daripada titania bebas, maka kontak antara metil oranye dengan fotokatalis menjadi lebih efektif. Faktor lain adalah bahwa pada sistem fotokatalisis nanokomposit titania-silika, silika dapat menyediakan tempat bagi metil oranye sehingga meningkatkan efektivitas interaksi antara metil oranye dengan radikal $\bullet\text{OH}$ (Xu and Langford, 1997). Hal ini didukung data analisis spektra inframerah bahwa gugus OH permukaan nanokomposit meningkat dengan penambahan silika. Peningkatan gugus OH tersebut secara tidak langsung merupakan bukti bahwa silika menyediakan situs adsorpsi intermediet reaksi untuk *hole* yang terfotoeksitasi. Dengan demikian jelas bahwa inkorporasi fotokatalis titania pada matriks silika dapat meningkatkan efektivitas degradasi metil oranye.

KESIMPULAN

Material nanokristalin titania terinkorporasi pada matriks silika (nanokomposit titania-silika) telah berhasil dipreparasi melalui proses sol-gel menggunakan titanium tetraisopropoksida dan tetraetil ortosilikat sebagai prekursor. Penambahan silika menyebabkan pembentukan ikatan *cross-linking* Si-O-Ti dan *oxygen vacancies* dalam titania. Inkorporasi titania pada matriks silika dapat meningkatkan stabilitas, energi *band gap* dan sifat fotokatalisis titania bebas.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada Dirjen Dikti dan Universitas Gadjah Mada atas dana penelitian melalui Penelitian Hibah Bersaing XVII.

DAFTAR PUSTAKA

- Alvaro, M., Carbonell, E., Fornés, V. and García, H., 2005, Enhanced Photocatalytic Activity of Zeolite-Encapsulated TiO₂ Clusters by Complexation with Organic Additives and N-Doping,, *ChemPhysChem*, 7, 1, 200 – 205.
- Brus, L., 1984, Electron-Electron Hole Interactions in Small Semiconductor Crystallinities: The size dependence of the lowest excited electronic state, *J. Phys. Chem.*, 80(9), 4403-4409.
- Cheng, P., Zheng, M., Jin, Y., Huang, Q. and Gu, M., 2003, Preparation and Characterization of Silica-Doped Titania Photocatalyst through Sol-Gel Method, *Mater. Lett.*, 57, 2989– 2994.
- Corma, A., 1997, From Microporous to Mesoporous Molecular Sieve Materials and Their Use in Catalysis, *Chem. Rev.* 97, 2373.
- Ding, X., An, G., Li, T., Zhang, S., Chen J., Yuan, J., Zhao, H., Chen, H., Sheng, G. and Fu, J., 2008, Preparation and characterization of hydrophobic TiO₂ pillared clay: The effect of acid hydrolysis catalyst and doped Pt amount on photocatalytic activity, *J. Colloid Interface Sci.*, 320, 2, 501-507
- Ekimov, A.I., Efros, A.I.L. and Anuchenko, A.A., 1985, Quantum Size Effect in Semiconductor Microcrystals, *Solid State Communication*, 5611, 921-1524
- Hoffman, M.R., Martin, S.T., Choi, W., and Bahnemann, D.W., 1995, Environmental Applications of Semiconductor Photocatalysis, *Chem. Rev.*, 95, 69-96.
- Huang, M., Xu, C., Wu, Z., Hua, Y, Lin, J., Wu, J.; 2008, Photocatalytic Discolorization of Methyl Orange Solution by Pt Modified TiO₂ Loaded on Natural Zeolite, *Dyes and pigments*, 77, 2, 327-334
- Ooka, C., Yoshida, H., Horio, M., Suzuki, K. and Hattori, T., 2003, Adsorptive and Photocatalytic Performance of TiO₂ Pillared Montmorillonite in Degradation of Endocrine Disruptors Having Different Hydrophobicity, *Applied Catalysis B: Environmental*, 41, 3, 313-321
- Sukharev, V. and Kershaw, R., 1996, Concerning the Role of Oxygen in Photocatalytic Decomposition of Salicylic Acid in Water, *J. Photochem. Photobiol. A, Chem.*, 98 (3), 165–169.
- Takeda, S., Suzuki, S., Odaka, H., and Hosono, H., 2001, Photocatalytic TiO₂ Thin Film Deposited onto Glass by DC Magnetron Sputtering, *Thin Solid Films*, 392, 2, 338-344
- Tanaka, K., Fukuyoshi, J., Segawa, H. and Yoshida, K., 2006, Improved Photocatalytic Activity of Zeolite- and Silica-Incorporated TiO₂ Film, *J. Hazard. Mater.*, 137, 2, 947-951
- Vogel, R., Hoyer, P., Weller, H., 1994, Quantum-Sized PbS, CdS, Ag₂S, Sb₂S₃, and Bi₂S₃ Particles as Sensitizers for Various Nanoporous Wide-Bandgap Semiconductors, *J. Phys. Chem.* 98 (12) 3183– 3752.
- Xu, Y., and Langford, C.H., 1997, Photoactivity of Titanium Dioxide Supported On MCM-41, Zeolite X and Zeolite Y, *J. Phys. Chem. B*, 101, 3115-3121
- Zhou, Q. F., Zhang, Q. Q., Zhang, J. X., Zhang, L. Y., and Yao, X., 1996, Preparation and Optical Properties of TiO₂ Nanocrystalline Particles in SiO₂ Nano-Composites, *Mater. Lett.*, 39-42.