

## PREPARATION AND CHARACTERIZATION OF TiO<sub>2</sub>-ZEOLITE AND ITS APPLICATION TO DEGRADE TEXTILE WASTEWATER BY PHOTOCATALYTIC METHOD

### *Preparasi dan Karakterisasi TiO<sub>2</sub>-Zeolit Serta Pengujiannya pada Degradasi Limbah Industri Tekstil secara Fotokatalitik*

Yeslia Utubira<sup>a,\*</sup>, Karna Wijaya<sup>b</sup>, Triyono<sup>b</sup> and Eko Sugiharto<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Chemical Education Study Program, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, Pattimura University, Ir.M.Putuhena Street-Poka, Ambon

<sup>b</sup> Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, Gadjah Mada University, Sekip Utara Yogyakarta 55281

<sup>c</sup> Environmental Study Center, Lingkungan Budaya Street, Sekip Utara Yogyakarta 55281

Received 29 June 2006; Accepted 19 August 2006

### ABSTRACT

The preparation of titanium oxide-zeolite composite (TiO<sub>2</sub>-zeolite) has been done. Preparation was initiated by dispersing oligocation of titanium solution into suspension of natural zeolite. The suspension was stirred and then filtered to separate the solid phase from the filtrate. The solid phase was heated by microwave oven to convert the oligocations into its oxide forms and the resulting material (called as TiO<sub>2</sub>-zeolite) then was used to photodegrade the wastewater of PT.Jogjatex. The TiO<sub>2</sub>-zeolite and unmodified zeolite were characterized using X-ray diffractometry, FT-IR spectro-photometry, X-ray fluorescence (XRF) and gas sorption analysis (GSA) methods to determine their physicochemical properties. Photocatalytic activity of TiO<sub>2</sub>-Zeolite was tested by exposing the suspension of TiO<sub>2</sub>-Zeolite/wastewater by the UV light of 366 nm at room temperature for 15 – 75 minutes. Characterization results exhibited that the formation of TiO<sub>2</sub> on internal as well as external surfaces of Zeolite could not be detected with X-ray diffractometry as well as FT-IR spectrophotometry, however elemental analysis result with XRF indicated that titanium concentration in zeolite increased due to the inclusion, i.e from 0.26% (w/w) in zeolite to 2.80% (w/w) in TiO<sub>2</sub>-zeolite. Characterization result by GSA exhibited the increased of specific surface area from 19.57 m<sup>2</sup>/g in zeolite to 67.96 m<sup>2</sup>/g in TiO<sub>2</sub>-zeolite; total pore volume from 20.64 x 10<sup>-3</sup> mL/g in zeolite to 49.561 x 10<sup>-3</sup> mL/g in TiO<sub>2</sub>-Zeolite; pore radius average decreased from 21.10 Å in zeolite to 14.58 Å in TiO<sub>2</sub>-zeolite. Photocatalytic activity test of TiO<sub>2</sub>-zeolite on wastewater of PT. Jogjatex showed that UV radiation for 75 minutes on the mixture of TiO<sub>2</sub>-zeolite and wastewater resulted in the decreased of COD number up to 57.85%. Meanwhile the sorption study showed that zeolite and TiO<sub>2</sub>-zeolite could decrease COD number of wastewater up to 43.95% and 57.85%, respectively.

**Keywords:** TiO<sub>2</sub>-zeolite, photocatalytic, wastewater.

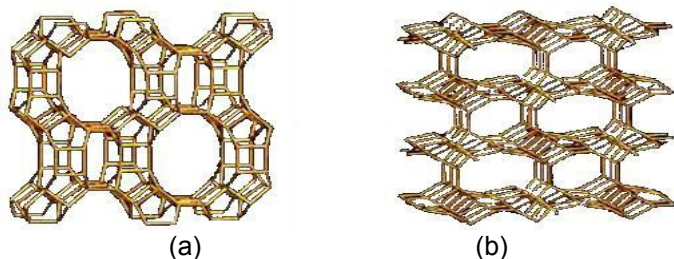
### PENDAHULUAN

Dewasa ini limbah industri tekstil merupakan salah satu bahan pencemar lingkungan yang mendapat perhatian serius dari para peneliti dan pemerintah karena dampaknya yang sangat berbahaya bagi kesehatan ekologi perairan. Bahan pencemar dari limbah industri tekstil biasanya merupakan senyawa organik *non biodegradable* misalnya senyawa fenol, zat warna, surfaktan, senyawa *polivinyil alkohol* (PVA) serta logam-logam berat misalnya As, Cd, Cr, Pb, Cu serta Zn. Limbah cair ini merupakan salah satu sumber pencemaran air yang cukup tinggi dan berbahaya terutama efek karsinogenik yang ditimbulkan oleh bahan tersebut. Beberapa cara pengolahan limbah cair tekstil secara konvensional telah banyak dikembangkan oleh para peneliti antara lain klorinasi, ozonisasi, maupun

biodegradasi dan memberikan hasil yang cukup memuaskan. Beberapa kelemahan dari metode-metode tersebut antara lain biaya operasionalnya tinggi dan relatif sulit diterapkan di Indonesia. Remediasi bahan pencemar melalui proses adsorpsi yang dewasa ini banyak digunakan dirasakan kurang begitu efektif karena limbah organik yang teradsorpsi masih terakumulasi di dalam adsorben yang pada suatu saat nanti akan menimbulkan masalah baru bagi lingkungan [1-7].

Saat ini teknik remediasi polutan yang sangat menjanjikan dan sedang berkembang adalah teknik fotodegradasi. Keberhasilan metode fotodegradasi ini bertumpu pada fotokatalis yaitu bahan padatan yang memiliki sifat semikonduktif misalnya TiO<sub>2</sub>, CdS dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Bahan tersebut dengan pengaruh radiasi sinar UV mampu mendestruksi senyawa organik melalui

\* Corresponding author.  
Email address : sjskewael@yahoo.com



**Gambar 1.** Struktur mordenit (a) dan klinoptilolit (b) sebagai komponen utama zeolit alam Indonesia [8].

oksidasi fotokatalitik. Dalam praktek remediasi polutan biasanya bahan semikonduktor tersebut dikombinasikan dengan matriks, seperti adsorben. Kombinasi ini akan meningkatkan kemampuan matriks, karena selain adsorpsi, bahan kombinasi yang umumnya merupakan komposit mampu mendegradasi limbah secara fotokatalitik. Di antara bahan semikonduktor tersebut,  $\text{TiO}_2$  merupakan bahan yang paling banyak digunakan dalam proses fotodegradasi [2,4,6,8,9]. Kemampuan  $\text{TiO}_2$  sebagai fotokatalis akan meningkat pada distribusi yang merata pada padatan. Hal ini disebabkan oleh peningkatan efektifitas semikonduktor suatu padatan pada ukuran partikel yang kecil atau dalam skala nanometer [2,5,10-16]. Dengan mendispersikan bahan  $\text{TiO}_2$  ke dalam pori-pori zeolit, maka penggunaan bahan menjadi lebih irit dan juga lebih mudah menanganinya. Penggunaan zeolit sebagai *host material* untuk oksida logam  $\text{TiO}_2$  telah banyak dilaporkan [4,13,14,16]. Pemanfaatan zeolit sebagai matriks untuk sintesis oksida-oksida logam disebabkan karena zeolit mempunyai pori-pori yang berdimensi nanometer sehingga dapat dimanfaatkan sebagai pembatas pertumbuhan partikel.

Dalam tulisan ini akan dipaparkan penggunaan fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit yang dibuat dengan cara inklusi oligokation titan ke dalam pori-pori zeolit alam yang diikuti dengan proses pemanasan menggunakan *microwave oven* untuk mengubah oligokation menjadi bentuk oksida  $\text{TiO}_2$  di permukaan internal dan eksternal zeolit. Tahap selanjutnya  $\text{TiO}_2$ -zeolit yang terbentuk digunakan untuk mendegradasi limbah cair tekstil dengan bantuan radiasi sinar ultra violet. Sebagai perbandingan dibuat juga limbah cair tekstil yang ditambahkan dengan zeolit alam dan diberi perlakuan yang sama serta dengan  $\text{TiO}_2$ -Zeolit tanpa radiasi sinar UV.

## METODE PENELITIAN

### Bahan

Bahan-bahan utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah :  $\text{TiCl}_4$  [99 % (v/v), B<sub>j</sub> 1,73 kg/L] (Merck), zeolit alam yang dibeli dari PT Prima Zeolita, Propinsi DIY, air bebas ion, larutan  $\text{AgNO}_3$  (Merck),

indikator universal, kertas saring Whatman 42, kertas aluminium, HCl 6 M, (32 % v/v) (Merck), serta limbah cair industri tekstil dari PT. Jogjatek, Propinsi DIY,  $\text{HgSO}_4$ ,  $\text{AgSO}_4$ ,  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  (0,025M) dan larutan ferro amonium sulfat 0,025M.

### Alat

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah sebagai berikut : seperangkat peralatan gelas, thermometer, pengayak 250 *mesh* merk Fisher, cawan porselin, lumpang dan mortar porselin, pengaduk magnet, *hotplate*, tabung *centrifuge*, *centrifuge* merk Kokusan Ogawa Seiki Co. LTD, pipet tetes, pipet volum 10 mL, sendok sungsung, pengering, seperangkat alat refluks, buret, timbangan analit tipe Mettler-AT 200, oven, *microwave oven* dan lampu UV. Peralatan instrumen meliputi : Difraktometer sinar-X Philips model PW 3710 BASED, *Gas Sorption Analyzer* NOVA 1000 (P3TM, BATAN Yogyakarta), FTIR-8201 PC Shimadzu, X-Ray *Fluorescent Analyzer* tipe EG & ORTEG 7001 (P3TM, BATAN Yogyakarta).

### Prosedur Kerja

#### Preparasi zeolit alam sebagai inang fotokatalis $\text{TiO}_2$

Zeolit alam diayak hingga lolos penyaring berukuran 250 *mesh*. Seratus gram zeolit hasil ayakan dicuci dengan 2L aquadest sambil diaduk selama 24 jam. Suspensi disaring dengan menggunakan kertas Whatman 42. Hasil penyaringan dikeringkan dalam oven selama 4 jam pada suhu 400°C. Setelah kering zeolit tersebut digerus sampai halus dan diayak menggunakan pengayak 250 *mesh* selanjutnya hasilnya dianalisis dengan XRD, XRF, *Gas Sorption Analyzer*, dan FTIR.

#### Sintesis $\text{TiO}_2$ -Zeolit

Fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit dibuat dengan metode inklusi larutan oligokation Ti dalam pori-pori Zeolit. Larutan kompleks oligokation Ti dibuat dengan menambahkan 20 mL  $\text{TiCl}_4$  9,01 M sedikit demi sedikit ke dalam 4 mL larutan HCl 6,0 M. Selanjutnya diencerkan pelan-pelan dengan air bebas ion sedemikian sampai konsentrasi Ti 0,82 M sehingga terbentuk larutan kompleks Ti berwarna bening. Larutan kompleks Ti diperam (*aged*) dalam temperatur kamar (29 °C) selama 8 jam dengan pH larutan 1,1.

Fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit dibuat dengan metode sebagai berikut: 18 g zeolit didispersikan ke dalam 2 L air bebas ion (*deionized water*) dan suspensi yang terbentuk diaduk dengan pengaduk magnet selama 5 jam. Kemudian kedalam suspensi tersebut dituangkan sedikit demi sedikit larutan kompleks oligokation Ti 0,82 M sampai diperoleh perbandingan antara titan dan zeolit sebesar 10 mmol Ti: 1 g zeolit. Campuran diaduk kuat dengan pengaduk magnet selama 18 jam. Hasil

yang diperoleh *dicentrifuge* selama 30 menit. Endapannya diambil dan dicuci dengan air bebas ion sambil disaring dengan menggunakan kertas saring Whatman 42. Pencucian dilakukan berkali-kali untuk membebaskan ion  $\text{Cl}^-$ . Keberadaan ion  $\text{Cl}^-$  dalam filtrat diuji dengan larutan  $\text{AgNO}_3$  sampai tidak terdapat endapan putih  $\text{AgCl}$ . Zeolit yang terinklusi kompleks Ti dikeringkan dalam *oven* pada temperatur  $110\text{ }^\circ\text{C}$ - $130\text{ }^\circ\text{C}$ , selanjutnya digerus sampai halus kemudian diayak menggunakan ayakan *250 mesh*, hasilnya dipanaskan menggunakan *microwave oven* 800 watt selama 5 menit. Hasil pemanasan yang diperoleh diberi nama fotokatalis titan dioksida-zeolit ( $\text{TiO}_2$ -Zeolit) dan dianalisis dengan XRD, XRF, *gas sorption analyzer*, dan spektrofotometer FTIR.

### Fotodegradasi limbah cair tekstil menggunakan fotokatalis $\text{TiO}_2$ -Zeolit

Sebanyak sepuluh gelas *beaker* 250 mL masing-masing diisi dengan 100 mL limbah cair dan 50 mg fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit. Lima dari sepuluh gelas *beaker* tersebut dibungkus dengan plastik hitam sebelum diekspos sinar UV masing-masing selama 15, 30, 45, 60 dan 75 menit, sedangkan lima gelas lainnya yang berisi  $\text{TiO}_2$ -zeolit dalam limbah cair dibungkus dengan plastik hitam dan dibiarkan di dalam tempat gelap sambil diaduk masing-masing selama 15, 30, 45, 60 dan 75 menit. Suspensi disaring menggunakan kertas saring Whatman 42, dan selanjutnya filtrat yang diperoleh dianalisis untuk mengetahui angka *Chemical Oxygen Demand* (COD). Sebagai pembanding maka dibuat juga sampel limbah cair tekstil yang ditambahkan dengan zeolit dan dilakukan perlakuan yang sama dengan fotokatalis tersebut menggunakan sinar ultra violet

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Preparasi Zeolit Alam Sebagai Inang Fotokatalis $\text{TiO}_2$

Preparasi diawali dengan pencucian zeolit alam. Pencucian ini bertujuan untuk menghilangkan impuritis yang larut dalam air yang menempel pada permukaan zeolit, selanjutnya zeolit alam tersebut dikeringkan dalam oven pada suhu  $400\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 jam dimaksudkan untuk menguapkan seluruh molekul-molekul air yang tertinggal serta molekul-molekul organik yang mungkin masih ada. Hal ini penting dilakukan agar ruang antar pori menjadi relatif lebih kosong, tidak terpenuhi oleh molekul air atau molekul organik lainnya. Selanjutnya dilakukan preparasi  $\text{TiO}_2$ -zeolit. Untuk menghilangkan pengotor-pengotor organik yang masih ada di dalam zeolit serta untuk memperbesar permukaan zeolit, maka dilakukan pemanasan dengan menggunakan *microwave oven* 800 watt selama 5 menit, sedangkan pemanasan terhadap senyawa oligokation titan-zeolit asal bertujuan untuk mentransformasikan oligokation menjadi bentuk oksidanya. Metode pemanasan dengan menggunakan

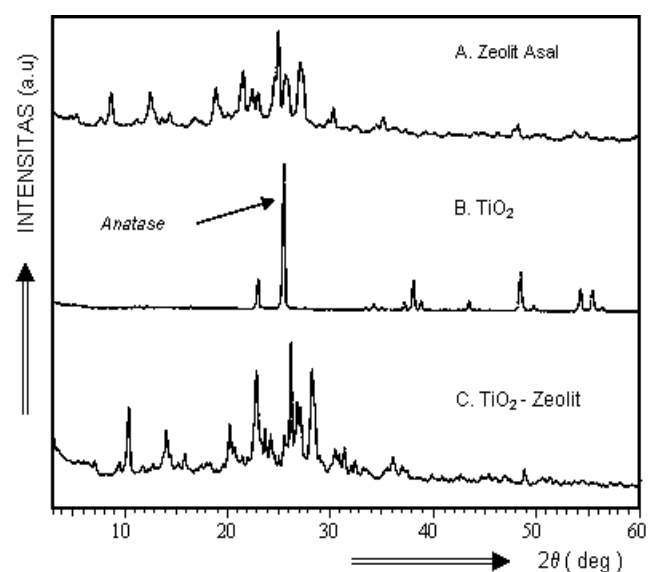
*microwave oven* ini mempunyai keunggulan dibandingkan dengan metode konvensional dengan *furnace*, karena di samping penggunaannya yang praktis juga memerlukan waktu yang lebih singkat.

### Karakterisasi Fotokatalis $\text{TiO}_2$ -Zeolit

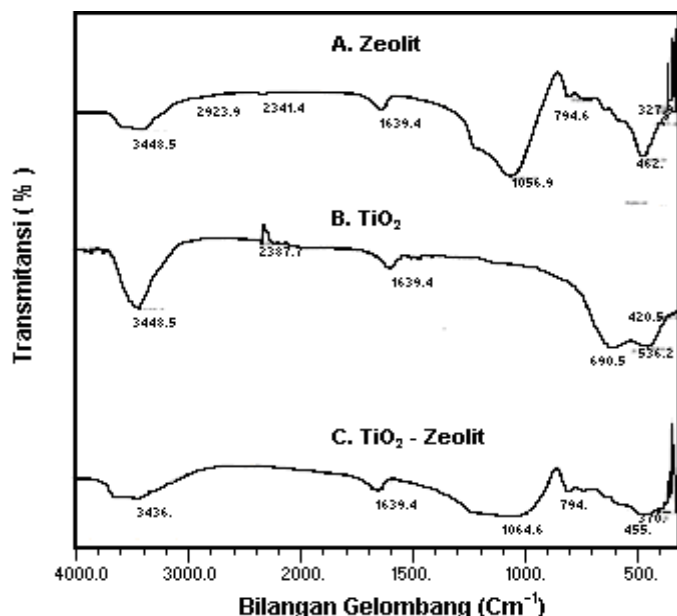
Hasil analisis dengan difraksi sinar X dari zeolit alam serta zeolit alam yang termodifikasi titan oksida ditampilkan pada difraktogram Gambar 2. Dari hasil analisis XRD diperoleh data bahwa refleksi dengan intensitas yang tajam pada daerah  $2\theta = 13,50^\circ$ ;  $19,71^\circ$ ;  $25,70^\circ$ ;  $27,80^\circ$ ;  $28,08^\circ$  ( $d=6,55\text{ \AA}$ ;  $4,49\text{ \AA}$ ;  $3,46\text{ \AA}$ ;  $3,20\text{ \AA}$ ;  $3,17\text{ \AA}$ ) merupakan karakteristik mineral mordenit (M), sedangkan refleksi dengan intensitas terbesar pada daerah  $2\theta = 9,85^\circ$  dan  $22,34^\circ$  ( $d= 8,96\text{ \AA}$  dan  $3,97\text{ \AA}$ ) merupakan karakteristik mineral klinoptilolit (KI) dan mineral kuarsa memberikan refleksi dengan intensitas terbesar pada daerah  $2\theta=26,68^\circ$  ( $d=3,33\text{ \AA}$ ). Dari hasil karakterisasi ini dapat diketahui bahwa zeolit alam yang digunakan pada penelitian ini mengandung campuran mineral mordenit dan klinoptilolit.

Dari difraktogram  $\text{TiO}_2$ -zeolit tidak terlihat refleksi  $\text{TiO}_2$  secara jelas di daerah  $2\theta = 20$  sampai  $25^\circ$ . Hal ini mungkin disebabkan oleh tumpang tindihnya refleksi  $\text{TiO}_2$  dengan zeolit.

Namun dari difraktogram terlihat puncak-puncak kecil yang mungkin disebabkan oleh refleksi  $\text{TiO}_2$  *anatase* pada daerah  $2\theta = 35,78^\circ$ ;  $48,54^\circ$  dan  $56,91^\circ$  dengan jarak  $d = 2,50\text{ \AA}$ ;  $1,87\text{ \AA}$  dan  $1,61\text{ \AA}$  (difraktogram C) yang sebelumnya tidak muncul pada difraktogram zeolit alam (A). Dari difraktogram ini belum dapat dipastikan apakah  $\text{TiO}_2$  telah terdispersi di dalam pori-pori atau permukaan eksternal zeolit.



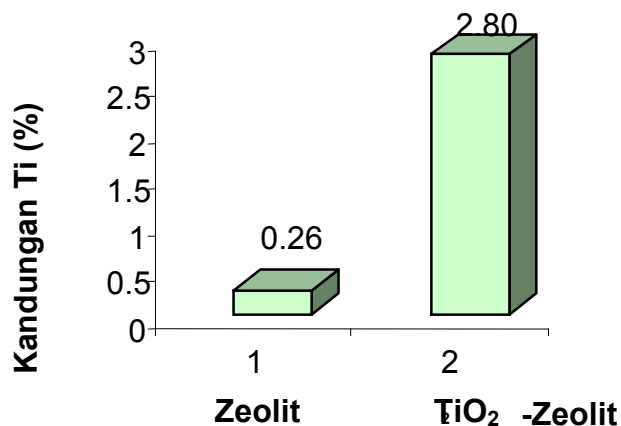
**Gambar 2.** Difraktogram (A) zeolit alam, (b) kristal  $\text{TiO}_2$ , (C)  $\text{TiO}_2$ -zeolit



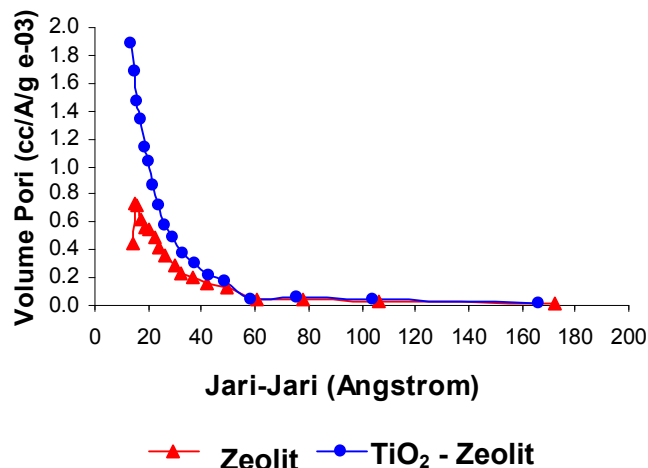
**Gambar 3.** Spektre FTIR (A) zeolit, (B) kristal TiO<sub>2</sub> (Anatase,) (C) TiO<sub>2</sub>-zeolit

Karakterisasi gugus-gugus fungsional secara kualitatif dipelajari dengan spektrofotometer FTIR dan hasilnya disajikan pada Gambar 3. Untuk spektra zeolit terlihat bahwa serapan pada bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 3448,5 cm<sup>-1</sup> karakteristik untuk rentangan O-H oktahedral (O-H) regang) dari H<sub>2</sub>O yang diperkuat oleh serapan pada bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 1639,4 cm<sup>-1</sup> yang merupakan serapan deformasi dari H<sub>2</sub>O (O-H tekuk). Serapan pada bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 2992,7 cm<sup>-1</sup> merefleksikan adanya gugus C-H, karena daerah ini merupakan vibrasi ulur C-H [15]. Gugus C-H ini diduga berasal dari pengotor senyawa organik yang tereperangkap dalam kerangka zeolit. Keberadaan pengotor senyawa organik ini akan hilang dengan pemanasan menggunakan *microwave oven* karena pengotor tersebut memiliki titik didih yang rendah.

Serapan pada bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 1056,9 cm<sup>-1</sup> dan 794,6 cm<sup>-1</sup> merupakan serapan regangan asimetris dan asimetris eksternal O-Si-O atau O-Al-O. Serapan pada bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 462,9 cm<sup>-1</sup> adalah karakteristik ikatan Al-O dan Si-O bonding. Spektra FTIR TiO<sub>2</sub>-zeolit menunjukkan adanya pergeseran serapan bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) pada 3436,9 cm<sup>-1</sup> yang merupakan serapan ikatan O-H regang yang menunjukkan terjadinya dehidrasi akibat proses pemanasan dengan *microwave oven*. Pada spektra TiO<sub>2</sub>-Zeolit muncul kembali bilangan gelombang ( $\tilde{\nu}$ ) 1639,4 cm<sup>-1</sup> yang berasal dari ikatan O-H. Dari hasil analisis FTIR ini belum dapat dipastikan terbentuknya TiO<sub>2</sub> pada permukaan zeolit baik eksternal maupun internal, yaitu dengan tidak munculnya serapan pada daerah sekitar 2300 cm<sup>-1</sup>, 690 cm<sup>-1</sup> dan 420 cm<sup>-1</sup> yang merupakan karakter TiO<sub>2</sub>. Keberhasilan pengembangan



**Gambar 4.** Kandungan Ti dalam zeolit, dan fotokatalis TiO<sub>2</sub>-zeolit



**Gambar 5.** Distribusi ukuran pori zeolit dan TiO<sub>2</sub>-zeolit

**Tabel 1** Hasil analisis serapan gas Nitrogen

Sampel	Luas permukaan spesifik, m <sup>2</sup> /g	Volume pori total, x 10 <sup>-3</sup> mL/g	Rerata jejari pori, Å
Zeolit	19,57	20,64	21,10
TiO <sub>2</sub> -Zeolit	67,96	49,56	14,58

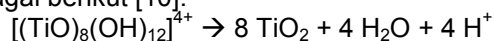
TiO<sub>2</sub> pada zeolit dapat dibuktikan dengan pengukuran kandungan titan pada zeolit, yaitu dengan menggunakan analisis XRF. Hasil analisis dengan XRF disajikan dalam Gambar 4.

Dari hasil analisis XRF yang ditampilkan pada Gambar 4 terlihat kandungan titan dalam zeolit sebelum dimodifikasi adalah 0,26 % (b/b), sedangkan kandungan titan dalam TiO<sub>2</sub>-zeolit yang dibuat melalui metode inklusi kompleks oligokation adalah 2,80% (b/b). Terjadi peningkatan titan dalam bentuk oksidanya sebesar 2,54%. Hal ini mengindikasikan

berhasilnya proses inklusi larutan kompleks oligokation titan dengan kation terhidrat dalam zeolit.

Hasil analisis luas permukaan dan volume total pori terhadap TiO<sub>2</sub>-zeolit dan zeolit alam yang ditampilkan dalam Tabel 1 menunjukkan bahwa formasi TiO<sub>2</sub> di permukaan dalam dan luar zeolit mengakibatkan peningkatan luas permukaan spesifik dan volume total pori yang cukup signifikan pada TiO<sub>2</sub>-zeolit. Peningkatan luas permukaan dan volume total pori diperkirakan berasal dari TiO<sub>2</sub> yang terdistribusi di permukaan eksternal zeolit.

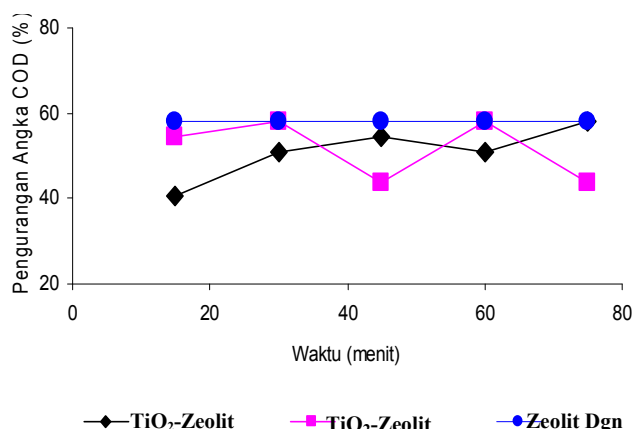
Pembentukan TiO<sub>2</sub> juga meningkatkan jumlah mesopori (diameter sekitar 50 Angstrom) pada TiO<sub>2</sub>-zeolit (Gambar 5). Peningkatan sifat-sifat fisikokimia zeolit akibat pembentukan TiO<sub>2</sub> diharapkan dapat menaikkan performa fotokatalitik bahan tersebut. Dari hasil karakterisasi yang telah dikemukakan di atas dapat diyakini bahwa TiO<sub>2</sub> telah terbentuk di permukaan eksternal maupun internal zeolit asal. Dengan mengacu pada reaksi pembuatan titan dioksida dari oligokation [2,10], maka pembentukan TiO<sub>2</sub> pada permukaan zeolit dari oligokation titan mengikuti persamaan reaksi sebagai berikut [10]:



Oligokation titan kemungkinan ada yang menempel pada permukaan zeolit dan yang lain masuk ke dalam pori-pori zeolit sebagian atau seluruhnya. Muatan negatif zeolit di permukaan dalam dan pada patahan-patahan zeolit akan dikompensasikan oleh proton yang terbentuk dari hasil reaksi tersebut sehingga muatan bahan (TiO<sub>2</sub>-Zeolit) secara keseluruhan tetap netral.

### Fotodegradasi Limbah Cair Tekstil PT. Jogjatex

Reaksi fotodegradasi atau reaksi penguraian senyawa organik pada dasarnya merupakan reaksi oksidasi yang diinduksi oleh cahaya ultra violet. Reaksi tersebut dapat berlangsung apabila dalam suatu sistem terdapat sumber cahaya (*foton*), substrat organik, oksigen dan fotokatalis. Dalam penelitian ini telah dilakukan reaksi fotodegradasi terhadap limbah cair tekstil PT. Jogjatex dengan menggunakan sistem *batch*, sebagai sumber cahaya (*foton*) digunakan lampu UV dengan panjang gelombang 366 nm serta fotokatalis TiO<sub>2</sub>-Zeolit, dengan konsentrasi 50 mg TiO<sub>2</sub>-Zeolit dalam 100 mL limbah cair tekstil. Gas oksigen yang berfungsi sebagai penangkap elektron berasal dari gas O<sub>2</sub> di udara (O<sub>2</sub> bebas). Pengamatan aktivitas fotokatalis dan kemampuan adsorpsi bahan tersebut dilakukan melalui pengukuran angka COD setelah perlakuan selama 15 sampai 75 menit dengan selang waktu 15 menit, dan proses dilakukan pada suhu kamar. Sebagai pembanding maka dilakukan juga perlakuan sampel limbah cair tekstil menggunakan fotokatalis TiO<sub>2</sub>-zeolit dalam gelap tanpa penyinaran UV serta zeolit. Hasil analisis COD limbah cair tekstil disajikan dalam Tabel 2.

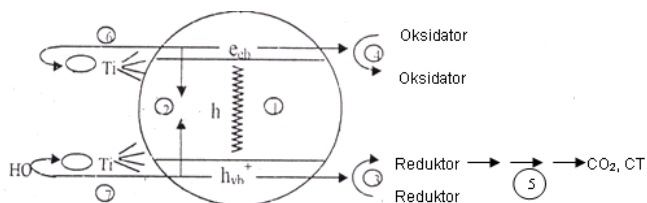


**Gambar 6** Pengurangan angka COD limbah cair tekstil setelah fotodegradasi dan adsorpsi menggunakan TiO<sub>2</sub>-zeolit serta sorpsi dengan zeolit alam

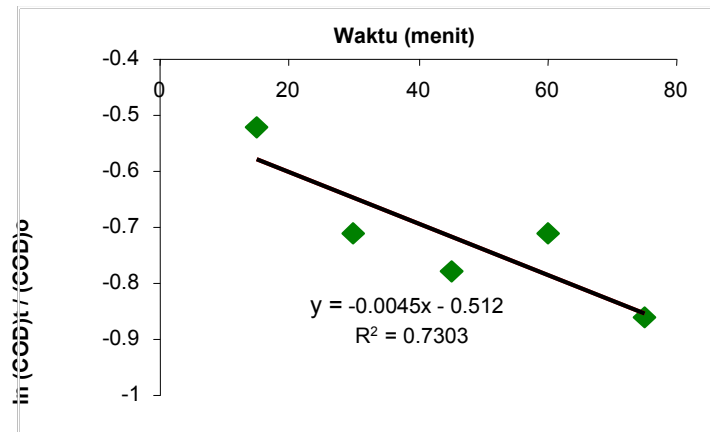
Persentase pengurangan angka COD limbah cair tekstil setelah fotodegradasi dan adsorpsi menggunakan fotokatalis TiO<sub>2</sub>-zeolit serta zeolit alam disajikan dalam Gambar 6. dengan angka COD awal dari limbah cair (sebelum fotodegradasi) adalah sebesar 230,14 mg/L.

Dari Gambar 6 terlihat dengan lamanya waktu penyinaran UV pada perlakuan fotodegradasi maupun adsorpsi pengurangan angka COD limbah cair cukup berarti. Hal ini menunjukkan bahwa bahan TiO<sub>2</sub>-zeolit selain berperan sebagai adsorben, juga mempunyai kemampuan sebagai fotokatalis dalam fotodegradasi senyawa organik yang terdapat dalam limbah cair tekstil. Perlakuan adsorpsi dengan bahan TiO<sub>2</sub>-zeolit pada interval waktu 15-75 menit mampu menurunkan angka COD limbah cair PT. Jogjatex. Hal ini kemungkinan dipengaruhi oleh luas permukaan padatan dan TiO<sub>2</sub>-zeolit yang besar sehingga kapasitas adsorpsinya besar. Penggunaan zeolit sebagai kontrol menunjukkan bahwa radiasi UV tidak berperan dalam penurunan COD limbah. Dari waktu ke waktu nilai COD paska perlakuan dengan zeolit di bawah pengaruh radiasi UV relatif tetap. Ini menunjukkan penurunan COD dari harga awal 230, 14 mg/L menjadi 97 mg/L disebabkan oleh faktor adsorpsi.

Dari Gambar 6 terlihat terjadi pengurangan angka COD dalam sistem yang berbeda sejalan dengan lamanya waktu reaksi. Dalam waktu 75 menit sistem TiO<sub>2</sub>-zeolit dan sinar UV mampu mendergradasi limbah cair tekstil. Dengan persentase pengurangan angka COD limbah sebesar 57,85%, sedangkan dengan bahan yang sama namun tanpa sinar UV persentase pengurangan angka COD limbah cair adalah berkisar 43,95% untuk sistem tersebut selama 75 menit (Gambar 6). Untuk bahan zeolit, persentase pengurangan angka COD limbah cair dalam selang waktu 15-75 menit berkisar 57,85%. dan dapat dikatakan bagus namun proses yang terjadi adalah adsorpsi limbah cair pada permukaan zeolit bukan



Gambar 7 Mekanisme fotokatalitik pada partikel  $\text{TiO}_2$  [6]



Gambar 8. Kinetika fotodegradasi limbah cair tekstil menggunakan fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -Zeolit

proses fotodegradasi. Dalam penelitian ini tidak dilakukan kajian terhadap produk fotodegradasi dari limbah cair tekstil, disebabkan jenis senyawa yang terdapat dalam limbah cair tersebut terlalu kompleks.

Degradasi limbah cair tekstil menggunakan fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit secara umum terjadi melalui proses adsorpsi limbah cair tersebut ke permukaan fotokatalis yang disertai dengan proses oksidasi katalitik terhadap limbah cair tersebut.

Pada saat fotokatalis tersebut terkena radiasi sinar ultra violet yang memiliki energi yang bersesuaian atau bahkan melebihi energi celah pita dari oksida titan tersebut, maka elektron-elektron dalam pita valensi dari fotokatalis tersebut akan tereksitasi ke pita konduksi yang akan menghasilkan  $e_{cb}^-$  dan kekosongan atau *hole* ( $h_{vb}^+$ ) yang berperan serbagai muatan positif [6,9]. Selanjutnya  $h_{vb}^+$  akan bereaksi dengan hidroksida logam yaitu hidroksida oksida titan yang terdapat dalam larutan membentuk radikal hidroksida logam yang merupakan oksidator kuat untuk mengoksidasi senyawa – senyawa yang terdapat dalam limbah cair tersebut. Untuk elektron yang ada pada permukaan semikonduktor akan terjebak dalam hidroksida logam dan dapat bereaksi dengan  $\text{H}_2\text{O}$  atau  $\text{O}_2$  yang ada dalam larutan membentuk radikal hidroksi ( $\bullet\text{OH}$ ) atau superoksida ( $\bullet\text{O}_2^-$ ) yang akan mengoksidasi senyawa-senyawa yang terdapat dalam limbah cair tersebut. Radikal-radikal ini akan terbentuk terus-menerus selama  $\text{TiO}_2$ -zeolit masih dikenai radiasi sinar ultra violet dan akan menyerang senyawa-senyawa yang terdapat dalam limbah cair tersebut yang berada di permukaan katalis sehingga akan mengalami degradasi

menghasilkan senyawa-senyawa yang tidak berbahaya. Jadi dengan bertambahnya radiasi sinar UV maka foton yang mengenai  $\text{TiO}_2$ -zeolit akan semakin banyak sehingga limbah cair yang terdegradasi akan semakin banyak.

Untuk mengetahui orde reaksi dan konstanta laju reaksi fotodegradasi limbah cair tekstil menggunakan  $\text{TiO}_2$ -Zeolit dengan sinar UV dibuat grafik  $\ln(\text{COD})_t / (\text{COD})_0$  sebagai fungsi waktu penyinaran UV, di mana  $(\text{COD})_t$  merupakan nilai COD limbah setelah waktu tertentu (menit) sedang  $(\text{COD})_0$  adalah nilai COD limbah (awal) sebelum degradasi yaitu 230,14 mg/L, grafik  $\ln(\text{COD})_t / (\text{COD})_0$  untuk fotokatalis tersebut disajikan pada gambar 9.

Dari hasil pengolahan data yang kemudian ditampilkan dalam bentuk grafik di atas (Gambar 8) diperoleh nilai  $R^2$  jauh lebih kecil dari 1. Hal ini menunjukkan bahwa kinetika order reaksi fotodegradasi limbah cair PT.Jogjatex kemungkinan tidak mengikuti mekanisme reaksi order satu.

## KESIMPULAN

Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa zeolit yang termodifikasi dengan titan dioksida memiliki sifat-sifat fisikokimia yang lebih baik dibandingkan dengan zeolit alam seperti; kandungan titan meningkat dari 0,26% pada zeolit menjadi 2,80% pada  $\text{TiO}_2$ -zeolit; luas permukaan spesifik dari 19,57  $\text{m}^2/\text{g}$  pada zeolit menjadi 67,96  $\text{m}^2/\text{g}$  pada  $\text{TiO}_2$ -zeolit; volume pori total dari  $20,64 \times 10^{-3}$  mL/g menjadi  $49,56 \times 10^{-3}$  mL/g; serta penurunan rerata jejari pori dari 21,10 Å pada Zeolit menjadi 14,58 Å pada  $\text{TiO}_2$ -zeolit.

Fotodegradasi limbah cair industri tekstil menggunakan fotokatalis  $\text{TiO}_2$ -zeolit sebesar 50 mg dalam 50 mL limbah cair tekstil dengan radiasi UV pada panjang gelombang 366 nm mampu menurunkan angka COD limbah sebesar 57,85% dari angka COD awal limbah cair tekstil yaitu 230,14 mg/L selama penyinaran 75 menit.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini dibiayai oleh Proyek Riset Unggulan Terpadu XIII dengan Nomor Kontrak :08/Perj/Dep III/RUT/PPKI/II/2005 Tanggal 1 Februari 2005.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Anonim, 1998, *Standard Method for The Examination of Water and Wastewater*, 20<sup>th</sup> Edition, American Water Works Association, Water Environment Federation, Section 5220-5310.
2. Corrent, S., Cosa, G., Scaiano, J.C., Galletero, M.S., Alvaro, M and Garcia, H., 2001. *Chem. Mater.*, 13, 115-122.

3. Cotton, F.A, Wilkinson, G and Gaus, P.L., 1987, *Basic Inorganic Chemistry*, 2<sup>nd</sup> ed., John Wiley and Sons, Inc., New York
4. Durgakumari, V., Subrahmanyam, M., Subba Rao, K.V., Ratnamala, A., Noorjahan, M and Tanaka, K., 2002, *J. Appl. Catal, A : Gen*, 234, 155-165.
5. Ekimov, A.I., Efros, A.I.L. and Anuchenko, A.A., 1985, *Solid State Comm.*, 5611, 921-1524.
6. Hoffmann, M.R., Martin, S.T., Choi, W and Bahnemann, D.W., 1995, *Chem. Rev*, 95, 69-96.
7. Lachheb, H., Puzenat, E., Houas, A., Ksibi, M, Elaloui, E., Guillard, C and Hermann, J-M., 2002, *Appl. Catal. B: Env*. 39, 74-90.
8. Las, T. 2005, website <http://www.batan.go.id/p2plr/olahlimbah.html>, diakses tanggal 4 Desember 2005
9. Linsebigler A.L., Guangquan L., and Yates, Jr., J.T., 1995, *Chem Rev*, 735-758
10. Long, R.Q. and Yang, R.T., 1999, *J. Catal.* 186, 254-268
11. MENLH, 2005, Pengolahan dan Pemanfaatan Limbah, <http://www.MENLH.90.id/Usaha-kecil>, diakses tgl 27 Januari 2006.
12. Nogueira, R.F.P, and Jardim, W.F, 1993, *J of Chemical Education*, 70, 10, 861-862.
13. Rao, K.V.S., Srivinas, B., Prasad, A.R., and Subrahmanyam, M., 2000, *Chem. Commun*, 1633-1534.
14. Sampath, S., Uchida, H., and Yoneyama, H., 1994, *J. Phys. Chem*, 189-194
15. Stuart, B., and Ando, D.J., 1996, *Modern Infrared Spectroscopy*, John Wiley & Sons, New York.
16. Takeda, N., Torimoto, T., Yoneyama, H., 1999, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 72, 1615-1621
17. Weitkamp, J and Puppe, L., 1999, *Catalysis and Zeolites: Fundamentals and Application*, Springer, Berlin