

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI TiO₂/ZEOLIT VARIASI KOMPOSISI
DENGAN METODE SOL-GEL**

SKRIPSI

**Oleh:
FAHMI EKSA SAGITA
NIM. 12630027**



**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS SAINS DAN TEKNOLOGI
UNIVERSITAS ISLAM NEGERI MAULANA MALIK IBRAHIM
MALANG
2018**

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI TiO₂/ZEOLIT VARIASI KOMPOSISI
DENGAN METODE SOL-GEL**

SKRIPSI

**Oleh:
FAHMI EKSA SAGITA
NIM. 12630027**

**Diajukan Kepada:
Fakultas Sains dan Teknologi
Universitas Islam Negeri (UIN) Maulana Malik Ibrahim Malang
Untuk Memenuhi Salah Satu Persyaratan dalam
Memperoleh Gelar Sarjana Sains (S.Si)**

**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS SAINS DAN TEKNOLOGI
UNIVERSITAS ISLAM NEGERI MAULANA MALIK IBRAHIM
MALANG
201**

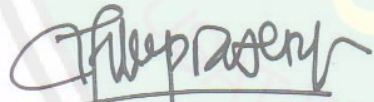
**SINTESIS DAN KARAKTERISASI TiO₂/ZEOLIT VARIASI KOMPOSISI
DENGAN METODE SOL-GEL**

SKRIPSI

Oleh:
FAHMI EKSA SAGITA
NIM. 12630027


Telah Diperiksa dan Disetujui untuk Diuji
Tanggal: 20 Maret 2018

Pembimbing I



Dr. Anton Prasetyo, M.Si
NIP. 19770925 200604 1 003


Pembimbing II



Umayyatus Syarifah, M.A
NIP. 19820925 200901 2 005



Mengetahui,
Ketua Jurusan Kimia



Elok Kamilah Hayati, M.Si
NIP. 19790620 200604 2 002

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI TiO₂/ZEOLIT VARIASI KOMPOSISI
DENGAN METODE SOL-GEL**

SKRIPSI

Oleh:
FAHMI EKSA SAGITA
NIM. 12630027

Telah Dipertahankan di Depan Dewan Penguji Skripsi
Dan Dinyatakan Diterima Sebagai Salah Satu Persyaratan
Untuk Memperoleh Gelar Sarjana Sains (S.Si)
Tanggal: 12 Maret 2018

Penguji Utama : Rachmawati Ningsih, M.Si
NIP. 19810811 2008012 0 10

(.....)

Ketua Penguji : Nur Aini, M.Si
NIDT. 19840608 20160801 2 070

(.....)

Sekretaris Penguji : Dr. Anton Prasetyo, M.Si
NIP. 19770925 200604 1 003

(.....)

Anggota Penguji : Umayyatus Syarifah, M.A
NIP. 19820925 200901 2 005

(.....)



Mengesahkan,
Ketua Jurusan Kimia

Elok Kamilah Hayati, M.Si
NIP. 19790620 200604 2 002

PERNYATAAN KEASLIAN TULISAN

Saya yang bertanda tangan dibawah ini:

Nama : Fahmi Eksa Sagita

NIM : 12630027

Jurusan : Kimia

Fakultas : Sains dan Teknologi

Judul Penelitian : Sintesis dan Karakterisasi TiO_2 /Zeolit Variasi Komposisi dengan Metode Sol-Gel

Menyatakan dengan sebenarnya bahwa skripsi yang saya tulis ini benar-benar merupakan hasil karya saya sendiri, bukan merupakan pengambilalihan data, tulisan atau pikiran orang lain yang saya akui sebagai hasil tulisan atau pikiran saya sendiri, kecuali dengan mencantumkan sumber cuplikan pada daftar pustaka. Apabila dikemudian hari terbukti atau dapat dibuktikan skripsi ini hasil jiplakan, maka saya bersedia menerima sanksi atas perbuatan tersebut.

Malang, 12 Maret 2018

Yang membuat pernyataan,



Fahmi Eksa Sagita

NIM. 12630027

MOTTO

“NIKMAT TUHAN-MU MANA LAGI YANG KAU DUSTAKAN”

Kekayaan diri berada pada hati, ia bernama *Qana'ah*.

Syukuri yang telah kita miliki.



KATA PENGANTAR



Alhamdulillahirobbil ‘Alamin, segala puji syukur penulis panjatkan kehadirat Allah SWT Yang Maha Pengasih dan Yang Maha Penyayang, dimana dengan limpahan rahmat, taufik dan hidayah-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan tugas akhir dengan judul **“Sintesis dan Karakterisasi TiO₂/Zeolit Variasi Komposisi dengan Metode Sol-Gel”** sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Sains (S.Si) dengan semaksimal mungkin, walupun masih jauh dari kesempurnaan. Semoga dari apa yang penulis upayakan ini dapat bermanfaat bagi orang di sekitar, dan menjadikan ilmu yang bermanfaat dan berkah. Aamiin.

Selama proses penulisan tugas akhir skripsi ini penulis mendapat banyak bimbingan, nasihat, dan bantuan dari berbagai pihak. Oleh karena itu, pada kesempatan ini penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Orang tua dan keluarga tercinta yang telah banyak memberikan perhatian, nasihat, doa dan dukungan baik moril maupun material sehingga penyusunan tugas akhir ini dapat terselesaikan.
2. Bapak Dr. Anton Prasetyo, M.Si, selaku pembimbing yang telah memberikan bimbingan, pengarahan, dan nasihat kepada penulis dalam menyelesaikan tugas akhir.
3. Ibu Nur Aini, M.Si, selaku dosen konsultan yang selalu memberikan bimbingan dan pengarahan sehingga penyusunan skripsi ini dapat terselesaikan.

4. Ibu Rachmawati Ningsih, M.Si dan Ibu Ummayatus Syarifah, M.A atas masukan dan sarannya skripsi ini bisa menjadi lebih baik.
5. Seluruh dosen Jurusan Kimia Fakultas Sains dan Teknologi UIN Maulana Malik Ibrahim Malang yang telah mengalirkan ilmu, pengetahuan, pengalaman dan wawasannya sebagai pedoman dan bekal bagi penulis.
6. Teman-teman tim riset Anorganik 2006-2017 dan Kimia 2012.
7. Mbak Susilowati, S.Si., Mbak Isnaeni, S.Si, dan Mas Chalid Al Ayyubi selaku laboran Kimia UIN Malang.
8. Laboratorium Energi-Metalurgi Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya untuk analisa XRD dan SEM-EDX, Laboratorium FMIPA untuk analisa Institut Teknologi Bandung untuk analisis Raman dan Laboratorium Instrumen UIN Malang untuk analisis IR.
9. Ibu Elok Kamilah Hayati, M,Si, selaku ketua jurusan Kimia Fakultas Sains dan Teknologi UIN Maulana Malik Ibrahim Malang.
10. Prof H. Abdul Haris, M.Ag selaku Rektor Universitas Islam Negeri (UIN) Maulana Malik Ibrahim Malang.
11. Dr. Sri Harini, M.Si selaku Dekan Fakultas Sains dan Teknologi UIN Maulana Malik Ibrahim Malang.

Bersama doa dan harapan semoga apa yang telah mereka berikan kepada penulis, mendapatkan balasan yang lebih baik dari Allah SWT. Semoga skripsi ini dapat memberikan informasi dan kontribusi positif serta bermanfaat bagi kita semua. Amiin.

Malang, 31 Maret 2018

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN PENGAJUAN	i
HALAMAN PERSETUJUAN	ii
HALAMAN PENGESAHAN	iii
HALAMAN PERNYATAAN	iv
MOTTO	v
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR LAMPIRAN	xiii
ABSTRAK	xiv
BAB I PENDAHULUAN	
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	6
1.3 Tujuan Penelitian	6
1.4 Batasan Masalah	7
1.5 Manfaat Penelitian	7
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Material Semikonduktor TiO ₂ Sebagai Fotokatalis	9
2.2 Mekanisme Fotokatalis dengan Material Semikonduktor TiO ₂	14
2.3 Zeolit sebagai <i>Supporting Material</i>	15
2.4 TiO ₂ Diembankan pada Zeolit	19
2.5 Sintesis TiO ₂ /zeolit dengan Metode Sol-Gel	25
BAB III METODOLOGI	
3.1 Waktu dan Tempat Penelitian	32
3.2 Alat dan Bahan	32
3.2.1 Alat-alat	32

3.2.2 Bahan-bahan	32
3.3 Rancangan Penelitian	32
3.4 Tahapan Penelitian	33
3.5 Prosedur Penelitian.....	33
3.5.1 Aktivasi Zeolit Alam Malang	33
3.5.2 Sintesis TiO ₂ yang Diembankan pada Zeolit dengan Variasi Komposisi TiO ₂ /zeolit.....	33
3.5.3 Analisis Karakteristik dengan Difraksi Sinar-X (XRD)	34
3.5.4 Analisis Karakteristik dengan SEM-EDX (<i>Energy Dispersive X-ray Spectroscopy</i>)	35
3.5.3 Analisis Karakteristik dengan Spektroskopi Raman	35
3.5.3 Analisis Karakteristik dengan FTIR (<i>Fourier Transform Infra- Red</i>).....	36
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	
4.1 Preparasi dan Aktivasi Zeolit Alam.....	38
4.2 Sintesis dan Karakterisasi Material TiO ₂ dengan Metode Sol-Gel....	39
4.3 Karakterisasi Hasil Sintesis TiO ₂	42
4.4 Karakterisasi Hasil Sintesis TiO ₂ /zeolit.....	47
BAB V PENUTUP	
5.1 Kesimpulan	55
5.2 Saran.....	55
DAFTAR PUSTAKA	56
LAMPIRAN	

DAFTAR GAMBAR

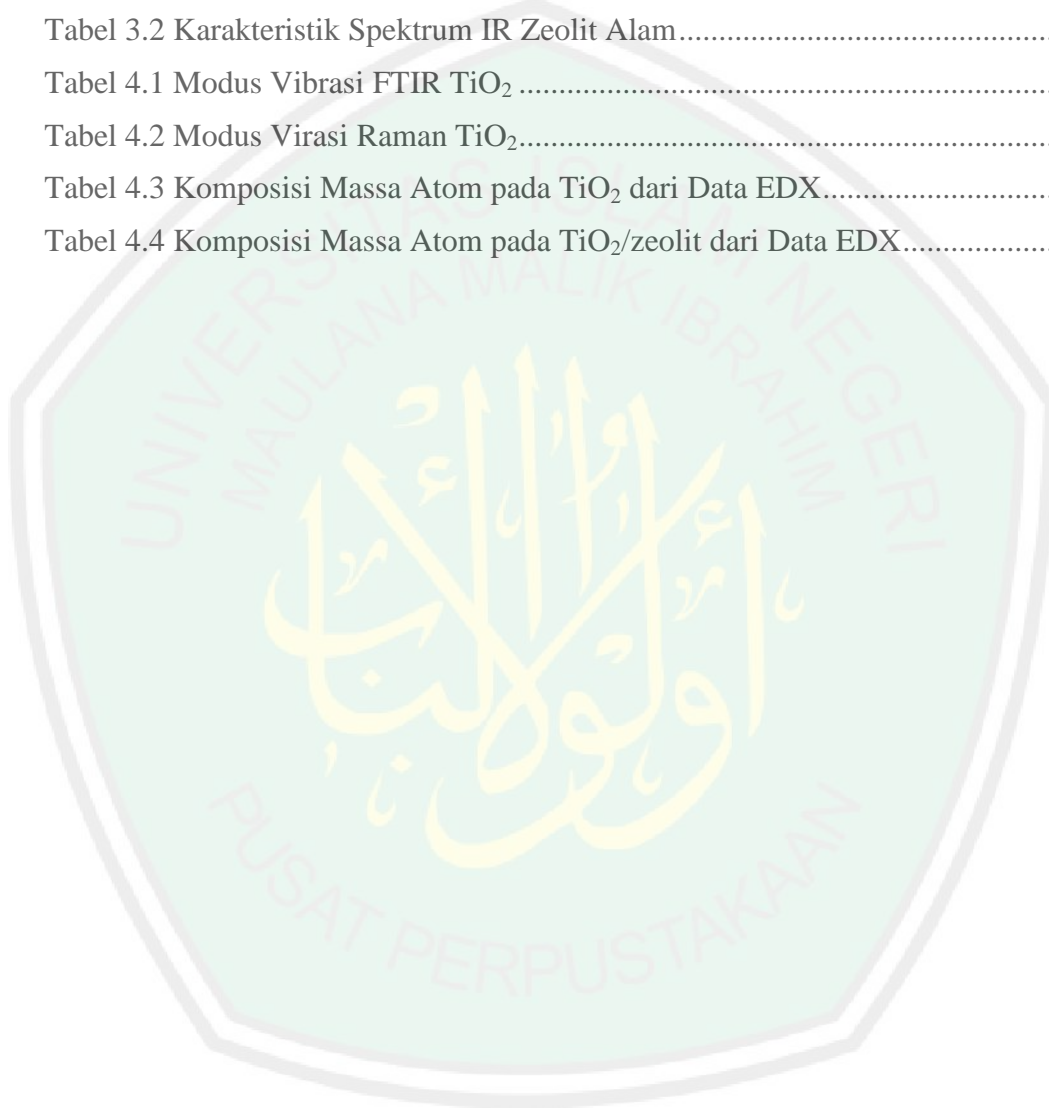
Gambar 2.1 Energi celah pita material semikonduktor	9
Gambar 2.2 Eksitasi elektron material semikonduktor	10
Gambar 2.3 Struktur polimorph TiO ₂	11
Gambar 2.4 Struktur kristal TiO ₂ anatase dan rutil.....	12
Gambar 2.5 Grafik energi celah pita berbagai semikonduktor	14
Gambar 2.6 Mekanisme reaksi fotokatalis pada semikonduktor TiO ₂	16
Gambar 2.7 Struktur zeolit alam modernit	18
Gambar 2.8 Aktivitas degradasi zeolit/ TiO ₂ selama lima siklus.....	20
Gambar 2.9 Perbandingan energi rekombinasi TiO ₂ ; S/TiO ₂ /zeolit; TiO ₂ /zeolit	21
Gambar 2.10 Difraktogram zeolit alam; TiO ₂ ; TiO ₂ -zeolit	22
Gambar 2.11 Spektrum IR zeolit; TiO ₂ ; TiO ₂ -zeolit	23
Gambar 2.12 Hasil analisis EDX pada Z-TiO ₂ -SG.....	23
Gambar 2.13 Hasil analisis EDX pada 15% TiO ₂ -NaY.....	24
Gambar 2.14 Raman TiO ₂ pada rentang 100-900 cm ⁻¹	25
Gambar 2.15 Proses sol-gel.....	27
Gambar 2.16 Spektra XRD (a) TiO ₂ -P25; (b) TiO ₂ -HCl; (c) TiO ₂ -CH ₃ COOH....	29
Gambar 2.17 Mekanisme reaksi Hidrolisis-Kondensasi metode sol-gel	29
Gambar 2.18 Morfologi permukaan zeolit (a) SEM zeolit murni; (b) SEM zeolit setelah pemuatan TiO ₂	30
Gambar 2.19 Spektra XRD (a) Zeolit; (b) TiO ₂ /zeolit; (c) TiO ₂	31
Gambar 4.1 Ilustrasi (1) mekanisme reaksi pelarutan menggunakan isopropanol; Penambahan asam asetat; Hidrolis menggunakan air.....	40
Gambar 4.2 Ilustrasi mekanisme reaksi pembentukan gel (polimerisasi) TiO ₂ dengan metode sol-gel	41
Gambar 4.3 Difraktogram TiO ₂ hasil sintesis dengan metode sol-gel.....	43
Gambar 4.4 Spektrum IR pada TiO ₂ hasil sintesis.....	44
Gambar 4.5 Spektrum Raman pada TiO ₂ hasil sintesis	45
Gambar 4.6 Hasil karakterisasi TiO ₂ menggunakan SEM.....	46
Gambar 4.7 Difraktogram (a) TiO ₂ ; (b) TiO ₂ /zeolit 30:70%; (c) TiO ₂ /zeolit 20:80%; (d) TiO ₂ /zeolit 10:90%; (e) TiO ₂ /zeolit 5:95%; (f) zeolit.....	48
Gambar 4.8 Spektra IR (a) zeolit alam; (b) TiO ₂ /zeolit 5:95%; (c) TiO ₂ /zeolit 5:95%; (b) TiO ₂ /zeolit 5:95%; (c) TiO ₂ /zeolit 5:95%; (f) TiO ₂	49

Gambar 4.9 Spektra Raman (a) zeolit; (b) TiO₂/zeolit 5:95%; (c) TiO₂/zeolit 10:90%; (d) TiO₂/zeolit 20:80%; (e) TiO₂/zeolit 30:80%; (f) TiO₂....51
Gambar 4.10 Hasil karakterisasi TiO₂/zeolit menggunakan SEM.....52



DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Komposisi Senyawa pada Sampel Z-TiO ₂ -SG	24
Tabel 3.1 Karakteristik Modus Vibrasi TiO ₂ dan Modus Vibrasi Zeolit Jenis Mordenit	36
Tabel 3.2 Karakteristik Spektrum IR Zeolit Alam.....	37
Tabel 4.1 Modus Vibrasi FTIR TiO ₂	43
Tabel 4.2 Modus Virasi Raman TiO ₂	45
Tabel 4.3 Komposisi Massa Atom pada TiO ₂ dari Data EDX.....	46
Tabel 4.4 Komposisi Massa Atom pada TiO ₂ /zeolit dari Data EDX.....	53



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1 Perhitungan	61
Lampiran 2 Diagram alir.....	64



ABSTRAK

Sagita, F. E. 2017. **Sintesis dan Karakterisasi TiO₂/Zeolit Variasi Komposisi Menggunakan Metode Sol-Gel**. Pembimbing I : Dr. Anton Prasetyo, M.Si Pembimbing II : Ummayatus Syarifah, M.A. Konsultan : Nur Aini, M.Si

Kata kunci: Titanium Dioksida, Zeolit alam, Sol-Gel

Titanium dioksida (TiO₂) banyak digunakan sebagai material fotokatalis. Kelemahan pemakaian TiO₂ dalam bentuk serbuk ialah terbentuknya aglomerasi sehingga mempengaruhi kinerja fotokatalisnya. Usaha untuk mengatasi masalah tersebut adalah diimbangkan dalam material penyangga. Salah satu material yang berpeluang digunakan sebagai material penyangga adalah zeolit alam. Dalam penelitian ini telah disintesis TiO₂ yang diimbangkan pada zeolit alam. TiO₂ teremban zeolit alam disintesis dengan metode sol-gel. Dalam penelitian ini digunakan rasio komposisi TiO₂/zeolit 5:95; 10:90; 20:80; dan 30:70%, dengan suhu kalsinasi pada 550°C selama 4 jam. Material yang dihasilkan dipelajari karakter struktur menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD), modulus vibrasi dan gugus fungsi dengan menggunakan spektroskopi inframerah (IR) dan spektroskopi raman, dan morfologi serta jumlah komposisi menggunakan *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (SEM-EDX).

Hasil pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa hasil sintesis TiO₂ berfasa anatas. Berdasarkan data pola difraksi sinar-X, dan spectra Raman TiO₂/zeolit diperoleh hasil bahwa TiO₂ berfasa anatas. Dari hasil karakterisasi *energy dispersive spectroscopy* menunjukkan bahwa TiO₂/zeolit mengandung unsur Ti yang mengindikasikan bahwa zeolit mengandung TiO₂.

ABSTRACT

Sagita, F. E. 2017. **Synthesis and Characterization TiO₂/Zeolite with Composition Ratio using Sol-Gel Method.** Supervisor I : Dr. Anton Prasetyo, M.Si. Supervisor II : Ummayatus Syarifah, M.A. Consultant : Nur Aini, M.Si

Keynotes: Titanium Dioxide, Natural Zeolite, Sol-Gel

Titanium Dioxide (TiO₂) is widely used as a photocatalyst material. The weakness of using TiO₂ in powder is formed agglomeration that can be affects of the photocatalyst. Attempts to address the problem are supported in the supporting material. One of the materials that is likely to be used as a supporting material is natural zeolite. TiO₂ supported on natural zeolite was synthesized using sol-gel method. In this research, the composition ratio of TiO₂/zeolite are 5:95; 10:90; 20:80; 30: 70%, and used the calcination temperature at 550°C for 4 hours. The resulting materials were characterized using X-Ray Difrraction (XRD), Infrared Spectroscopy (FTIR), Raman Spectroscopy, and Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (SEM-EDX).

The X-ray diffraction results show the synthesis of TiO₂ in the anatase phase, the IR and Raman spectra also shows that the phase of TiO₂ is anatase, showing that the synthesis of TiO₂/zeolite has been successfully performed. The EDX characterization shows that TiO₂/zeolite contains Ti element which indicates that zeolite contains TiO₂.

الملخص

سغيتا، ف.ع. ٢٠١٧. تحضير وتوصيف تيتانيوم ديؤكسد (TiO_2) / زيوليت الاختلاف في التكوين باستخدام طريقة سول-جيل. المشرف ١ : الدكتور انطان فراستيو، الماجستير، المشرفة ٢ : أمية الشرفية، الماجستير، المنتشرة: نور عيني، الماجستير.

الكلمات المفتاحية: تيتانيوم ديؤكسد، الزيوليت الطبيعي، سول-جيل

التيتانيوم الديؤكسد (TiO_2) مساحيق لها ضعف في تطبيقات ضوئية والجهد لحل المشكلة بتجيدو في المواد العازلة. واحدة من المواد التي من المرجح ان يستخدم كمادة عازلة هو الزيوليت الطبيعي. في هذه البحث قد تم تصنيعها تيتانيوم ديؤكسد الي الزيوليت الطبيعي. يتم تصنيع الزيوليت الطبيعي الذي يحمله (TiO_2) بواسطة طريقة سول-جيل. في هذه البحث نسبة تكوين (TiO_2) / زيوليت ٩٥ : ٥ ، ٩٠ : ١٠ ، ٨٠ : ٢٠ ، و ٧٠ : ٣٠ % مع درجة الحرارة التكريس عند ٥٥٠ درجة مئوية لمدة ٤ ساعات. درست المواد الناتجة الصبغية الهيكلية باستخدام الحيود الأشعة السينية (XRD)، وضع الاهتزاز والمجموعات الوظيفية باستخدام الطيفي الأشعة تحت الحمراء (IR) والطيقي رامان (*Raman Spectroscopy*) و مورفو لوجها وكذلك كمية التكوين باستخدام المسح الضوئي الجهري الالكتروني-تشتت الطاقة الأشعة السينية (SEM-EDX). يشير نتائج انخارج الأشعة السينية على أن نتيجة التوليف هو الأناتاس. نمط الحيود الأشعة السينية وطيقي TiO_2 /زيوليت أن ينظر TiO_2 المراحل الأناتاس. من نتائج توصيف EDX يعرض TiO_2 /زيوليت يحتوي على عنصر Ti الذي يشير إلى الزيوليت يحتوي على TiO_2 .

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Permasalahan limbah yang dihasilkan oleh kegiatan industri saat ini semakin besar, salah satunya ialah limbah cair, sehingga perlu adanya penanggulangan terkait permasalahan limbah tersebut. Secara alamiah, limbah organik pada pencemaran air akan terurai ataupun terdegradasi dengan adanya mikroba aerob yang dapat mengurai zat organik menjadi zat anorganik yang stabil dalam air dan tidak memberikan dampak pencemaran lingkungan, namun butuh waktu yang cukup lama untuk proses degradasi tersebut. Fotokatalis dianggap solusi terbaik saat ini untuk mengurangi permasalahan limbah yang dapat merusak lingkungan, hal ini dikarenakan fotokatalis memiliki beberapa kelebihan, yaitu: mempunyai reaksi reduksi dan oksidasi yang sangat baik, ikatan kimianya stabil dan tidak larut dalam air (Aliah, dkk., 2015). Selain itu, fotokatalis dapat mereduksi nilai *total dissolved solid* (TDS) sebesar 44,08%, *biological oxygen demand* (BOD) sebesar 73,44%, serta *chemical oxygen demand* (COD) sebesar 71,21% pada air limbah organik (Nugroho, 2011). Metode pengolahan fotokatalis menawarkan solusi yang efektif dan murah dalam mendegradasi limbah organik dan bakteri berbahaya dalam air.

Fotokatalis merupakan bahan yang dapat meningkatkan laju reaksi oksidasi dan reduksi yang diinduksikan oleh cahaya (Nandiyanto, 2013). Prinsip dan penggunaan fotokatalis dianggap sebagai metode yang efisien untuk memisahkan senyawa polutan. Beberapa jenis fotokatalis yang digunakan untuk

proses fotokatalitik seperti TiO_2 , CdS , ZnO , Fe_2O_3 , GaP , SiC , dan WO_3 adalah senyawa yang memiliki sifat semikonduktor. Semikonduktor sendiri merupakan material yang dicirikan dengan terisinya pita valensi dan kosongnya pita konduksi, pita *bonding* terluar disebut pita valensi sedangkan pita *antibonding* terluar disebut pita konduksi (Palupi, 2006). Kedua pita tersebut dipisahkan atau dibatasi oleh energi ambang (celah pita).

Senyawa TiO_2 (titanium (IV) oksida) anatas merupakan semikonduktor yang paling sering digunakan dalam proses fotokatalis karena ekonomis, memiliki stabilitas kimia dalam jangka waktu yang panjang, ramah lingkungan, memiliki *band gap* yang cukup besar yaitu 3,2 eV, stabilitas terhadap foton yang baik, dan aktivitas fotokatalis yang tinggi. Kelebihan TiO_2 dibandingkan dengan dengan material semikonduktor lain ialah tidak bersifat toksik (Choi, dkk., 2009) dan kemampuannya dapat digunakan berulang kali tanpa kehilangan aktivitas katalitiknya (Fatimah, 2009). Selain itu, fotokatalis juga dapat memanfaatkan cahaya matahari yang akan mengubah senyawa-senyawa yang bersifat toksik menjadi senyawa yang tidak berbahaya (Tian, 2009).

Semikonduktor TiO_2 memang relatif efisien sebagai material fotokatalis. meskipun demikian, TiO_2 masih memiliki kelemahan, salah satunya ialah luas permukaan (*surface area*) yang kecil sehingga kapasitas adsorpsi pada proses fotokatalis relatif rendah. Kim, dkk. (2007) melakukan sintesis fotokatalis TiO_2 dengan metode sol-gel tanpa adanya material pendukung ataupun dopan, melaporkan bahwa dengan naiknya suhu kalsinasi maka *surface area* semakin kecil, hal ini disebabkan oleh adanya efek *sintering* yang membuat partikel-partikel yang kecil mengalami aglomerasi. Aktivitas fotokatalis dengan senyawa

semikonduktor TiO_2 dalam mendegradasi polutan, dilaporkan masih dapat ditingkatkan dengan adanya material penyangga. Shankar, dkk. (2005) menyatakan bahwa fotokatalis TiO_2 harus diimbangkan pada material penyangga untuk dapat meningkatkan kemampuan fotokatalitik dan kapasitas serapannya. Beberapa material penyangga yang telah digunakan adalah material alam seperti zeolit atau bentonit. Utubira, (2006) melaporkan bahwa TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit meningkatkan kemampuan fotokatalitiknya.

Zeolit adalah salah satu jenis mineral kekayaan alam Indonesia yang dapat kita manfaatkan sebagai material penyangga terhadap semikonduktor TiO_2 sehingga dapat meningkatkan aktivitas fotokatalisnya. Zeolit merupakan senyawa kimia alumino-silikat berhidrat dengan kation natrium, kalium, dan barium. Struktur zeolit sangat unik dimana atom silikon dikelilingi oleh 4 atom oksigen sehingga membentuk semacam jaringan dengan pola yang teratur (Hartini, 2011). Sifat fisika dan kimia dari zeolit yang unik, sehingga para peneliti menggunakan zeolit sebagai mineral serba guna. Sifat-sifat unik tersebut meliputi dehidrasi, adsorben dan penyaring molekul, katalisator, dan penukar ion yang dapat dimanfaatkan dalam banyak bidang seperti pertanian, peternakan, perikanan, sumber daya energi, dan industri (Rahman dan Hartono, 2004). Hal ini sangat berkaitan sekali dengan apa yang tertuang dalam al-Quran pada surat al-Imran (3): 190-191 berikut:

إِنَّ فِي خَلْقِ السَّمُوتِ وَالْأَرْضِ وَاخْتِلَافِ اللَّيْلِ وَالنَّهَارِ لَآيَاتٍ لِّأُولِي الْأَلْبَابِ ۝ ١٩٠ الَّذِينَ يَذْكُرُونَ اللَّهَ قِيمًا
وَقُعُودًا وَعَلَىٰ جُنُوبِهِمْ وَيَتَفَكَّرُونَ فِي خَلْقِ السَّمُوتِ وَالْأَرْضِ رَبَّنَا مَا خَلَقْتَ هَذَا بَطْلًا تُسَبِّحُكَ فَقِنَا عَذَابَ

النَّارِ ۝ ١٩١

Artinya: (190). “*Sesungguhnya dalam penciptaan langit dan bumi, dan silih bergantinya malam dan siang terdapat tanda-tanda bagi orang-orang yang berakal.*”

(191). “*(yaitu) orang-orang yang mengingat Allah sambil berdiri atau duduk atau dalam keadaan berbaring dan mereka memikirkan tentang penciptaan langit dan bumi (seraya berkata): ya Tuhan kami, tiadalah Engkau menciptakan ini dengan sia-sia, Maha Suci Engkau, maka peliharalah kami dari siksa neraka.*”

Ayat ini merupakan petunjuk Allah SWT kepada manusia bahwa sesungguhnya tidak ada sesuatu yang diciptakan didunia ini dengan sia-sia, pada ayat (مَا خَلَقْتُمْ هَذَا) *maa kholaqta hadza* yang berarti “sesuatu yang diciptakan” diiringi dengan ayat (بُطْلَانًا) *bathilaan* yang berarti “sia-sia” dan hendaklah kita sebagai manusia senantiasa menjaga, merawat, bahkan memanfaatkannya. Ayat tersebut menjelaskan bahwa Allah SWT menciptakan sesuatu di langit, di bumi, dan di antara keduanya sesungguhnya memiliki manfaat dan tujuan yang benar, termasuk juga mineral alam seperti zeolit yang merupakan salah satu ciptaan Allah SWT yang memiliki banyak sekali manfaat, sebagai manusia yang *ulul albab* yaitu manusia yang berakal, sudah semestinya untuk menggunakan pikirannya untuk selalu mengambil manfaat dari setiap apapun yang Allah SWT ciptakan didunia ini.

Kemampuan zeolit sebagai material penyangga terhadap material katalis berkaitan dengan tersedianya pusat-pusat aktif dalam saluran antar zeolit, pusat-pusat aktif tersebut terbentuk karena adanya gugus fungsi asam tipe Bronsted maupun Lewis. Perbandingan kedua jenis asam ini tergantung pada proses aktivasi zeolit dan kondisi reaksi. Pusat-pusat aktif yang bersifat asam ini selanjutnya dapat mengikat molekul-molekul basa secara kimiawi. Manfaat zeolit sebagai material penyangga terhadap material katalis ialah mampu memperbesar

surface area sehingga dapat memperkecil kemungkinan agregasi TiO₂ pada permukaannya (Shankar, dkk., 2006). Seperti yang dilaporkan oleh Liu, dkk. (2014) bahwa TiO₂ yang diimbangkan pada zeolit mampu digunakan berulang kali, setelah dilakukan regenerasi sebanyak lima kali tidak terjadi penurunan kapasitas adsorpsi secara signifikan dan bahkan cenderung lebih mudah dipisahkan dengan senyawa yang didegradasi. Semikonduktor TiO₂ dengan material penyangga zeolit dapat lebih meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya dibandingkan dengan TiO₂ tanpa zeolit. Hal ini dikarenakan zeolit mampu menyerap senyawa organik pada permukaan fotokatalis, sehingga lebih cepat untuk mendegradasi polutan (Noorjahan, dkk., 2004). Wang dan Li (2014) juga melakukan uji aktivitas fotokatalis dan adsorpsi TiO₂ yang diimbangkan pada zeolit, dan melaporkan bahwa rekombinasi *electron-hole* pada TiO₂ dengan zeolit lebih kecil dibandingkan dengan TiO₂ tanpa zeolit.

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk sintesis material fotokatalis TiO₂/zeolit seperti metode padatan, sol-gel, sonikasi, dan metode impregnasi. Salah satu metode yang dapat dilakukan adalah metode sol-gel, karena metode sol-gel dikenal sebagai salah satu metode sintesis nanopartikel yang cukup sederhana dan mudah (Fernandez, 2011). Selain itu juga salah satu metode yang cukup baik dalam proses preparasi material oksida nanopartikel. Sol merupakan suspensi koloid yang fasa terdispersinya berbentuk cairan sedangkan gel merupakan jaringan partikel atau molekul baik padatan dan cairan, dimana polimer yang terjadi didalam larutan digunakan sebagai tempat pertumbuhan zat anorganik.

Sintesis material fotokatalis TiO_2 yang diembankan pada zeolit menggunakan metode sol-gel seperti yang dilakukan oleh Liu, dkk. (2014) melaporkan bahwa hasil karakterisasi menunjukkan TiO_2 berada pada fasa anatas setelah proses kalsinasi pada suhu $550\text{ }^\circ\text{C}$, sedangkan yang dilakukan oleh Alwash, dkk. (2013), melaporkan bahwa dengan menggunakan metode impregnasi tidak ada puncak yang muncul pada daerah serapan khas yang dimiliki oleh fasa anatas dengan suhu kalsinasi $550\text{ }^\circ\text{C}$. Fasa anatas tampak pada suhu kalsinasi $700\text{--}800\text{ }^\circ\text{C}$ dengan metode sintesis impregnasi.

Berdasarkan hal-hal tersebut, untuk mensintesis material fotokatalis dengan senyawa semikonduktor TiO_2 perlu dilakukan *supporting* dengan zeolit, dengan harapan dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya. Upaya yang dapat dilakukan antara lain memperbesar *surface area*, memperkecil kemungkinan terjadinya rekombinasi, dan meningkatkan kemampuan serapan sehingga pemisahan polutan lebih maksimal. Oleh karena itu, dalam penelitian ini dilakukan sintesis TiO_2 /zeolit dengan kajian perbandingan komposisi terkait fotokatalis TiO_2 /zeolit yang disintesis dengan metode sol-gel dan karakterisasi terhadap struktur, lokal struktur, morfologi, dan modus vibrasi dengan instrumen *X-ray diffraction (XRD)*, *scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX)*, spektroskopi Raman, dan *fourier transform infrared (FTIR)*.

1.2 Rumusan Masalah

Adapun rumusan masalah yang dapat kita ambil dari penelitian ini yaitu bagaimana karakteristik struktur, lokal struktur, morfologi, dan modus vibrasi

molekul TiO₂ anatas yang diimbangkan terhadap zeolit alam dengan sintesis menggunakan metode sol-gel pada perbandingan komposisi TiO₂/zeolit (%) 100:0 30:70, 20:80, 10:90, 5:95, dan 0:100?

1.3 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan dari penelitian ini adalah untuk memberikan informasi karakteristik struktur, serapan sinar, dan vibrasi molekul dari hasil sintesis TiO₂ yang diimbangkan terhadap zeolit dengan menggunakan metode sol-gel dan perbandingan komposisi TiO₂/zeolit (%) 100:0 30:70, 20:80, 10:90, 5:95, dan 0:100.

1.4 Batasan Masalah

Adapun batasan masalah pada penelitian ini adalah, yaitu:

1. Variasi TiO₂/zeolit dengan perbandingan komposisi (%) 100:0 30:70, 20:80, 10:90, 5:95, dan 0:100.
2. Prekursor untuk sintesis TiO₂ menggunakan titanium (IV) isopropoksida.
3. Sintesis TiO₂/zeolit menggunakan metode sol-gel.
4. Teknik karakterisasi yang digunakan adalah XRD, FTIR, Spektroskopi Raman, dan SEM-EDX.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini yaitu memberikan informasi-informasi baru tentang karakteristik material TiO₂/zeolit dengan perbandingan komposisi (%)

100:0 30:70, 20:80, 10:90, 5:95, dan 0:100 yang disintesis dengan metode sol-gel dan potensinya sebagai fotokatalis.

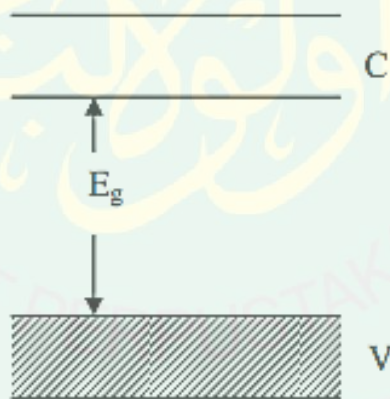


BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Material Semikonduktor TiO_2 sebagai Fotokatalis

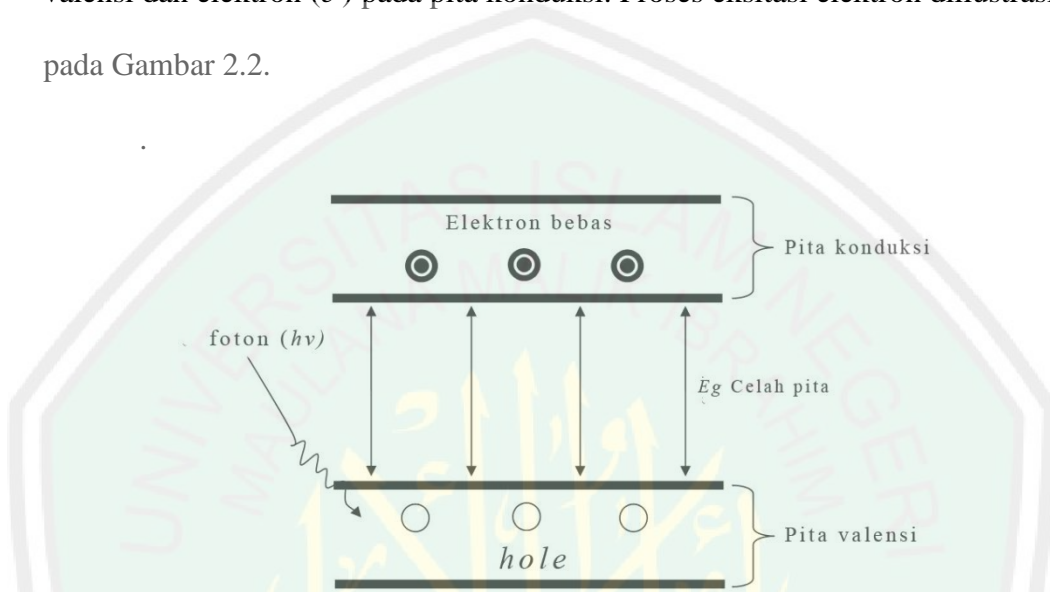
Semikonduktor adalah material dengan daya hambat elektrik antara isolator dengan konduktor dan biasanya dicirikan oleh struktur pita elektron. Semikonduktor memiliki celah pita antara 0,5-5,0 eV. Pita yang mempunyai energi tertinggi disebut pita konduksi (C) dan pita energi terendah yang terisi elektron disebut dengan pita valensi (V) yang keduanya dipisahkan oleh celah pita (*band gap*) (Kaneko dan Okura, 2002). Pita energi semikonduktor diilustrasikan pada Gambar 2.1.



Gambar 2.1 Energi celah pita material semikonduktor (Kaneko dan Okura, 2002)

Energi celah pita adalah energi yang diperlukan suatu elektron untuk melakukan eksitasi dari pita valensi menuju pita konduksi, semakin lebar celah pita maka semakin besar energi yang diperlukan. Besarnya energi celah pita dapat diukur menggunakan panjang gelombang cahaya yang dapat mengeksitasi elektron (Ningsih, 2012). Semikonduktor yang memiliki celah pita cukup lebar

tidak akan mampu mengalami eksitasi. Akan tetapi dengan adanya energi dari luar seperti foton akan membuat elektron mampu tereksitasi dari pita valensi menuju pita konduksi. Proses eksitasi tersebut akan menghasilkan *hole* (h^+) pada pita valensi dan elektron (e^-) pada pita konduksi. Proses eksitasi elektron diilustrasikan pada Gambar 2.2.

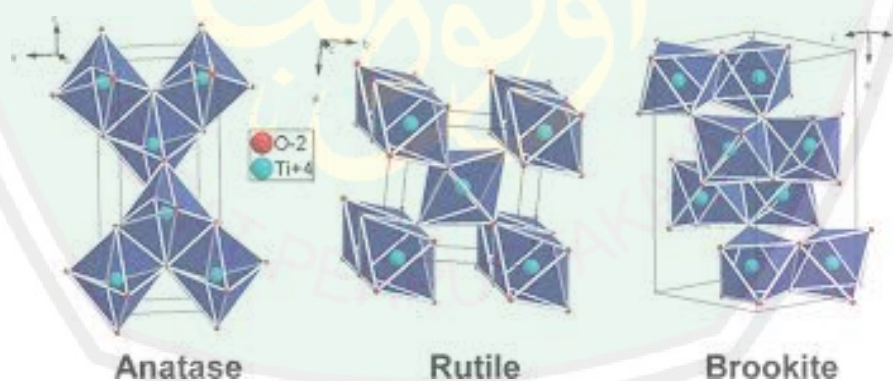


Gambar 2.2 Eksitasi elektron material semikonduktor (Kaneko dan Okura 2002)

Titanium dioksida (TiO_2) adalah salah satu material semikonduktor oksida dari titanium yang dikenal juga dengan nama titania atau titanium (IV) oksida. TiO_2 dapat digunakan pada level tinggi fotokonduktivitas, mudah digunakan, tingkat toksisitasnya rendah, *inert* dan harganya murah dengan aktivitas dan efisiensi fotokatalis tinggi (Chen dan Mao, 2007). TiO_2 mampu diaplikasikan di bawah sinar ultra violet (UV) dari cahaya matahari untuk fotokatalisis karena TiO_2 mempunyai energi celah pita yang nilainya lebih kecil dari energi sinar UV matahari, sehingga proses eksitasi elektron dapat berlangsung (Saravanan, dkk., 2009). Energi celah pita dari TiO_2 (anatase: 3,2 eV, rutil: 3,03 eV) adalah lebih

kecil dibandingkan dengan semikonduktor lain seperti ZnO (3,35 eV) dan SnO₂ (3,6 eV) (Schiavello, 1997).

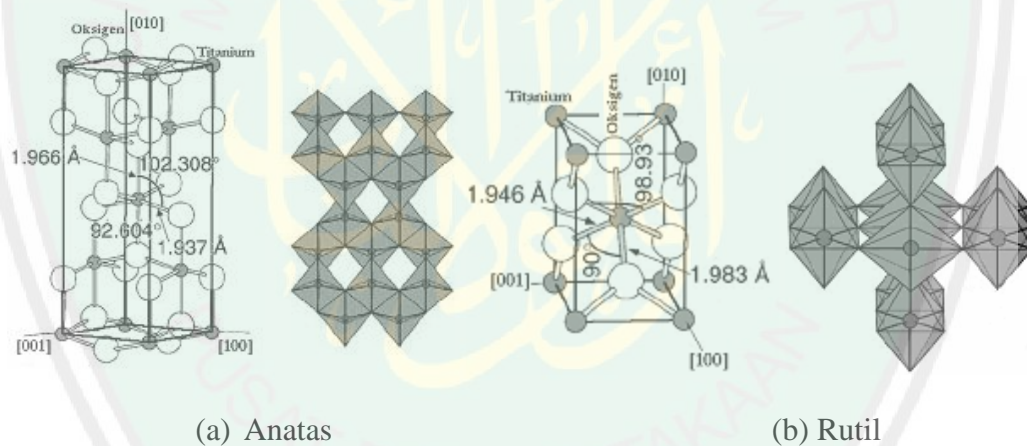
Kajian TiO₂ telah menarik minat banyak pihak pada dekade terakhir ini baik pada kajian sintesis, struktur dan aplikasinya. TiO₂ dikenal sebagai material dengan aplikasi yang luas seperti sebagai *sunscreen* sampai dengan aplikasi pada peralatan maju seperti sel fotovoltaik, fotokatalisis, *biosensing* dan *drug delivery*. Fotokatalisis dengan TiO₂ merupakan metode yang efisien untuk mendegradasi senyawa-senyawa organik dalam fase cair dan gas. Metode fotokatalis dengan TiO₂ telah digunakan dalam beberapa aplikasi komersial termasuk pemurnian air, unit pembersih udara, pelapis antimikroba dan kaca *self-cleaning* (Riyani, dkk., 2012). TiO₂ muncul dalam tiga bentuk struktur yang berbeda yaitu anatase, rutil, dan brookit yang ditampilkan pada Gambar 2.3 (Dambournet, dkk., 2010).



Gambar 2.3 Struktur polimorph TiO₂ (Dambournet, dkk., 2010)

Struktur kristal TiO₂ anatase dan rutil merupakan bentuk paling umum yang digunakan dalam fotokatalisis. Sedangkan brookit sulit dimurnikan dari mineralnya sehingga sulit ditemukan dan diamati (Diebold, 2003 dalam Marlupi, 2003). Struktur anatase dan rutil digambarkan dalam bentuk oktahedral TiO₆, dibedakan

oleh distorsi oktahedron dan pola rantai oktahedronnya. Setiap ion Ti^{4+} dikelilingi oleh enam atom oksigen. Oktahedron pada rutil memperlihatkan sedikit distorsi ortorombik, sedangkan oktahedron pada anatase memperlihatkan distorsi yang cukup besar sehingga relatif tidak simetri. Jarak Ti-Ti pada fasa anatase lebih besar dibandingkan pada fasa rutil, pada fasa anatase sebesar 3,79 dan 3,04 Å sedangkan pada fasa rutil sebesar 3,57 dan 2,96 Å. Jarak antara ion Ti-O pada fasa anatase lebih pendek dibandingkan rutil. Pada fasa anatase sebesar 1,937 dan 1,966 Å sedangkan pada fasa rutil sebesar 1,946 dan 1,983 Å (Lisenbliger, dkk., 1995). Struktur kristal TiO_2 anatase dan rutil diperlihatkan pada Gambar 2.4.



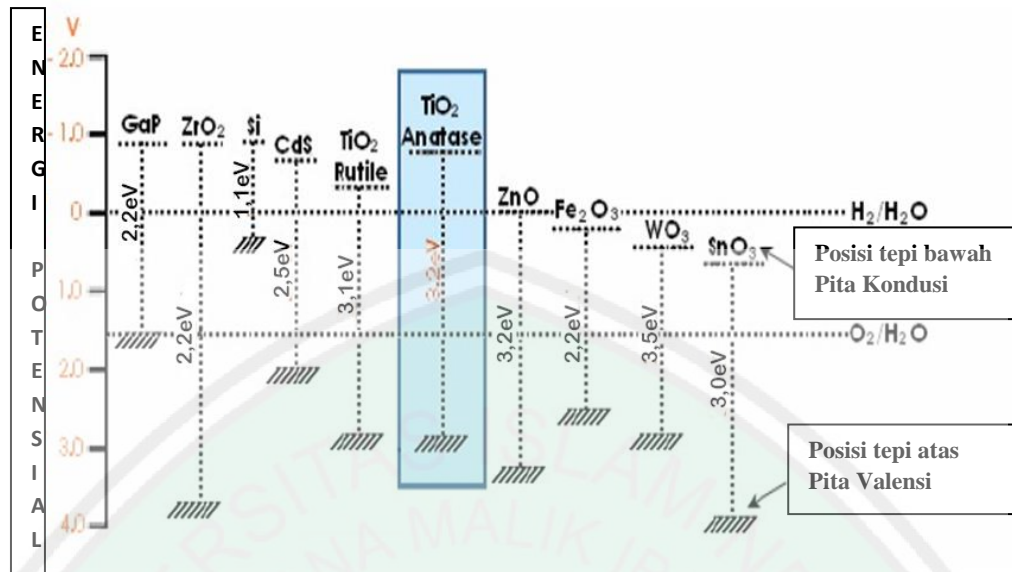
Gambar 2.4 Struktur kristal TiO_2 : (a) anatase, dan (b) rutil (Diebold, 2003)

Setiap oktahedron pada rutil mengalami kontak dengan 10 oktahedron tetangganya, sedangkan pada anatase setiap oktahedron mengalami kontak dengan delapan oktahedron tetangganya. Perbedaan dalam struktur kisi ini menyebabkan perbedaan masa jenis dan struktur pita elektronik antara dua bentuk TiO_2 (Lisenbliger, dkk., 1995), yaitu anatase memiliki daerah aktivasi yang lebih luas dibandingkan dengan rutil sehingga kristal tersebut menjadi lebih reaktif terhadap

cahaya dibandingkan dengan rutil. Besar energi celah pita yang dimiliki juga menjadi sedikit berbeda.

TiO₂ pada fasa anatas memiliki energi celah pita sebesar 3,2 eV, sedangkan pada fasa rutil memiliki energi celah pita sebesar 3,1 eV. Pita konduksi TiO₂ anatas memiliki nilai potensial reduksi sebesar ~ -1,0 volt dan pita valensi memiliki nilai potensial oksidasi sebesar ~ +3,0 volt, sedangkan pita konduksi TiO₂ rutil memiliki nilai potensial reduksi sebesar ~ -0,5 volt dan pita valensi memiliki nilai potensial oksidasi kira-kira sebesar ~ +3,0 volt, seperti ditampilkan pada Gambar 2.5.

Salah satu alasan perbedaan tersebut adalah karena jarak energi celah pita, pada kedua fasa TiO₂ anatas dan rutil memiliki posisi pita valensi yang hampir sama sehingga kekuatan oksidasi pada *hole* relatif sama, sedangkan posisi pita konduksi untuk fasa anatas lebih bernilai negatif dibandingkan dengan fasa rutil sehingga kekuatan reduksi pada fasa anatas lebih kuat. Secara keseluruhan fasa TiO₂ anatas memiliki aktivitas fotokatalis yang lebih besar. Posisi pita konduksi pada keduanya dekat dengan potensial energi reduksi oksidasi hidrogen yang menunjukkan bahwa kekuatan reduksi yang relatif lemah, sehingga dapat dikatakan *hole* pada permukaan TiO₂ merupakan oksidator kuat, dan karenanya akan mengoksidasi senyawa kimia yang mempunyai potensial redoks yang lebih kecil, termasuk molekul air dan/atau gugus hidroksil yang akan menghasilkan radikal hidroksil (Palupi, 2006)



Gambar 2.5 Grafik energi celah pita berbagai semikonduktor (Palupi, 2006)

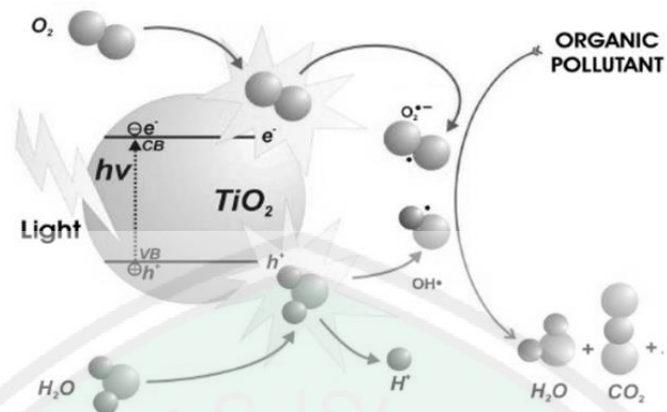
2.2 Mekanisme Fotokatalis dengan Material Semikonduktor TiO_2

Fotokatalisis merupakan suatu proses reaksi kimia yang menggunakan energi cahaya dan dipercepat dengan adanya material katalis (Bere, 2013). Fotokatalis secara umum didefinisikan sebagai suatu reaksi kimia yang dibantu oleh adanya material katalis padat yang diaktivasi oleh adanya energi foton dari cahaya matahari. Adanya pencahayaan sinar UV dengan panjang gelombang kurang dari 405 nm, material semikonduktor oksida seperti TiO_2 akan teraktivasi dan memiliki kemampuan untuk mendegradasi senyawa-senyawa organik. Fotokatalis dimulai dengan terbentuknya pasangan *electron-hole* (e^- dan h^+) akibat adanya eksitasi dari pita valensi menuju pita konduksi. Eksitasi akan terjadi ketika energi dari cahaya yang diberikan adalah sama atau melebihi dari energi celah pita yang dimiliki material semikonduktor (Hutomo, 2012). Mekanisme fotokatalisis terdiri dari beberapa proses umum sebagai berikut (Henderson, 2011):

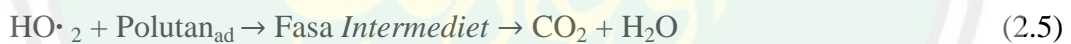
1. Penyerapan *foton*
2. Pembentukan muatan pasangan *electron-hole* (e^- dan h^+)
3. Proses transfer elektron dan *hole* pada permukaan TiO_2
4. Penyerapan molekul organik
5. Reaksi penguraian molekul organik
6. Kehadiran promotor dan inhibitor (seperti adanya H_2O_2)
7. Struktur material dan permukaan

Elektron akan tereksitasi ke pita konduksi menyebabkan pembentukan pasangan *elektron-hole* apabila energi cahaya yang diberikan sama atau lebih besar dari band gap ($h\nu \geq E_G$). Sebagian besar pasangan *electron-hole* akan mengalami rekombinasi kembali, baik dipermukaan ataupun di dalam *bulk* partikel. Namun, sebagian dari pasangan *electron-hole* dapat bertahan sampai permukaan semikonduktor dan dapat menginisiasi reaksi reduksi-oksidasi. *Hole* dapat menginisiasi reaksi oksidasi dan elektron akan menginisiasi reaksi reduksi senyawa organik yang ada pada permukaan semikonduktor.

Hole tersebut memiliki afinitas yang tinggi terhadap oksigen dalam molekul H_2O yang teradsorp pada permukaan semikonduktor, sehingga akan bereaksi menjadi $\cdot\text{OH}$ dan H^+ . Radikal hidroksil merupakan spesi yang sangat reaktif menyerang molekul organik dan mendegradasinya menjadi CO_2 dan H_2O seperti ditunjukkan pada Gambar 2.6. Berikut adalah gambaran reaksi kimia yang terjadi pada proses fotokatalisis (Arutanti, 2009).



Gambar 2.6 Mekanisme reaksi fotokatalisis pada semikonduktor TiO_2 (Fujishima, dkk., 2008)



Kim, dkk. (2007) melakukan sintesis fotokatalis TiO_2 dengan metode sol-gel tanpa adanya material pendukung ataupun dopan, melaporkan bahwa dengan naiknya suhu kalsinasi maka *surface area* mengalami penurunan secara signifikan, yang mana pada suhu kalsinasi $400\text{ }^\circ\text{C}$ *surface area* dari TiO_2 sebesar $186\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$, pada suhu kalsinasi $500\text{ }^\circ\text{C}$ *surface area* dari TiO_2 sebesar $135\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$, dan pada suhu kalsinasi $600\text{ }^\circ\text{C}$ *surface area* dari TiO_2 menjadi sebesar $95\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$.

Fotokatalis TiO_2 menurut beberapa penelitian memang relatif cukup baik dalam mendegradasi limbah cair, namun demikian aktivitas fotokatalis TiO_2

masih bisa ditingkatkan dengan penambahan matriks atau material penyangga seperti adsorben. Material penyangga yang dapat digunakan ialah mineral alam seperti bentonit atau zeolit (Dini dan Wardhani, 2014). Guesh, dkk. (2016) mempelajari perbedaan laju degradasi *metil orange* menggunakan TiO_2 yang dilapiskan terhadap zeolit Y dan TiO_2 tanpa zeolit. Sintesis dilakukan pada suhu $550\text{ }^\circ\text{C}$ selama enam jam. Hasil penelitian menyebutkan bahwa laju degradasi metil orentang meningkat 34% setelah dikombinasi dengan zeolit yang mana mampu meningkatkan kapasitas adsorpsi dan mengurangi energi celah pita.

2.3 Zeolit sebagai Material Penyangga

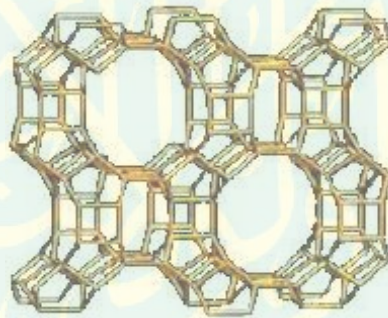
Zeolit pertama kali ditemukan oleh Freiherr Axel Cronstedt, seorang ahli mineralogi dari Swedia pada tahun 1756. istilah zeolit berasal dari bahasa Yunani “*zein*” yang berarti membuih, dan “*lithos*” yang berarti batu. Zeolit merupakan mineral alumina silikat terhidrat yang dapat mengikat molekul air secara *reversible*, penggunaan zeolit sendiri berkaitan dengan 4 sifat yang dimilikinya, yaitu:

1. Kemampuannya dalam melakukan pertukaran ion.
2. Daya serap dan daya saring molekul yang baik.
3. Daya katalis yang baik.

Zeolit menurut proses pembentukannya dibagi menjadi 2, yaitu zeolit alam (*natural Zeolit*) dan zeolit sintesis (*synthetic Zeolit*). Zeolit merupakan mineral kristal alumina silika tetrahidrat berpori dengan rumus kimia $M_8(\text{Si}_{40}\text{Al}_8\text{O}_{96})24\text{H}_2\text{O}$ dimana *M* adalah kation penyeimbang (alkali/alkali tanah) dalam rangka zeolit. Zeolit memiliki struktur kerangka tiga dimensi yang

terbentuk dari tetrahedral $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$ yang saling terhubung oleh atom oksigen (Chetam, 1992). Hingga kini terdapat kurang lebih 40 jenis mineral zeolit diantaranya klinoptilolit, kabasit, pilipsit, skolesit, analsit, dan mordenit (Wang dan Yuelian, 2010) yang dapat ditemukan melimpah, salah satunya di Indonesia.

Zeolit alam yang ada di Indonesia diketahui 60-70 % merupakan jenis mordenit dan sisanya klinoptilolit (Trisunaryanti, dkk., 2005). Zeolit alam jenis mordenit merupakan zeolit yang memiliki kandungan Si sedang dengan perbandingan $\text{Si}/\text{Al} = 5$ dan ukuran pori 6,7-7 Å (Lestari, 2010; Hasibuan, 2012). Struktur zeolit mordenit seperti ditunjukkan pada Gambar 2.7.



Gambar 2.7 Struktur zeolit alam mordenit (Utubira, dkk., 2006)

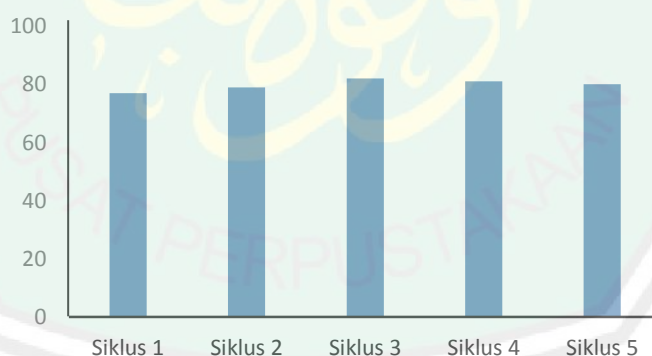
Zeolit alam jenis mordenit merupakan material mikropori yang memiliki kemampuan penyerapan dan difusi reaktan serta dapat digunakan sebagai bahan pengemban logam. Selain itu, rongga dan saluran yang dimiliki zeolit mordenit, mampu digunakan sebagai adsorben, penukar ion dan katalisator (Sutarti dan Rachmawati 1994). Zeolit mordenit juga termasuk dalam zeolit yang berpori besar (terbentuk dari cincin oksigen beranggotakan 12) yang memiliki stabilitas tinggi terhadap asam serta mampu mempertahankan strukturnya hingga suhu 800-900 °C (Prasetyo, dkk., 2012).

2.4 TiO₂ Diembankan Pada Zeolit

TiO₂/zeolit sering disintesis untuk memaksimalkan fungsi kerjanya terutama sebagai katalis di beberapa penelitian, salah satunya untuk mendegradasi limbah zat warna yang sulit diuraikan. Pada penelitian Wijaya, dkk. (2006) mengenai fotodegradasi senyawa *alizarin S* menggunakan TiO₂-zeolit diketahui bahwa senyawa *alizarin S* mampu teradsorpsi ke permukaan partikel fotokatalis secara simultan dan disertai proses oksidasi fotokatalitik. Senyawa *alizarin S* ini mampu terdegradasi menjadi senyawa sederhana yaitu CO₂, H₂O dan SO₄²⁻ dengan hasil degradasi sebesar 99% dalam waktu 60 menit.

Penelitian yang dilakukan Fatimah dan Wijaya (2005), menunjukkan bahwa sintesis TiO₂/zeolit sebagai fotokatalis mampu menurunkan kadar COD dan sianida dari limbah tepung tapioka secara adsorpsi-fotodegradasi, dengan konsentrasi TiO₂ terbaik 0,12 M. Konsentrasi TiO₂ yang ditambahkan dalam zeolit dapat mempengaruhi konstanta laju degradasi methylene blue dengan konsentrasi optimum TiO₂ yang ditambahkan adalah 10 mmol/g zeolit dengan efektivitas penggunaan kembali hingga empat kali pemakaian berturut-turut sebesar 79,91; 77,31; 76,38; dan 72,06% (Damayanti, dkk., 2014). Sedangkan penelitian yang dilakukan Kuncorojati (2010) dalam mensintesis komposit TiO₂-zeolit alam (zeolit Lampung) karbon aktif, diketahui bahwa komposit tersebut mampu meningkatkan 2-3 kali dalam disinfeksi *E.coli*, oksidasi fenol dan reduksi Cr(VI) pada pengolahan limbah secara jamak dibandingkan pada pengolahan secara tunggal. Komposit tersebut optimal untuk pengolahan limbah jamak dengan 17% berat TiO₂, 81% zeolit alam dan 2% karbon aktif.

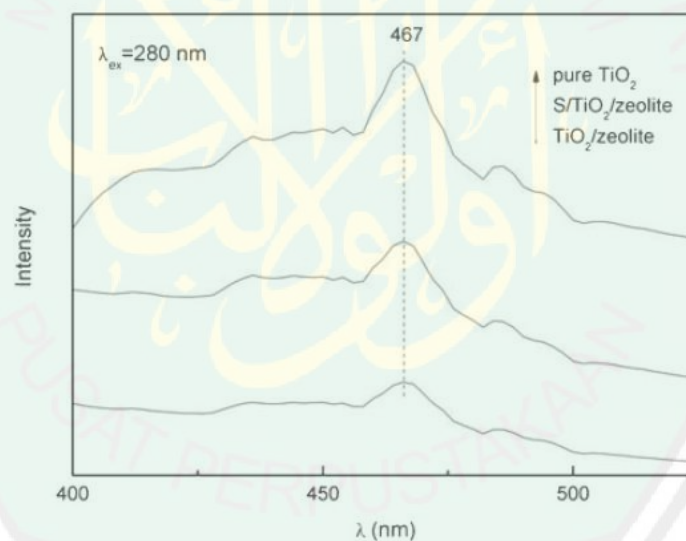
Shankar, dkk. (2006) melaporkan pada penelitian sebelumnya, zeolit mampu memperbesar *surface area* sehingga dapat memperkecil kemungkinan agregasi TiO_2 pada permukaannya, sehingga kapasitas adsorpsi fotokatalis semakin besar. Liu, dkk. (2014) juga melaporkan bahwa TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit mampu digunakan berulang kali, setelah dilakukan regenerasi sebanyak lima kali tidak terjadi penurunan kapasitas adsorpsi secara signifikan dan bahkan cenderung lebih mudah dipisahkan dengan senyawa yang didegradasi. Aktivitas degradasi dari zeolit/ TiO_2 dapat dilihat pada Gambar 2.8 yang menunjukkan bahwa aktivitas degradasi katalis setelah regenerasi cenderung tetap. Hal ini mengindikasikan bahwa katalis lebih mudah diregenerasi dengan aktivitas yang tetap. Pengembanan TiO_2 pada zeolit memudahkan pemisahan fotokatalis dari larutan sampel.



Gambar 2.8 Aktivitas degradasi zeolit/ TiO_2 selama lima siklus (Liu, dkk., 2014)

Semikonduktor TiO_2 dengan *supporting* zeolit dapat lebih meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya dibandingkan dengan TiO_2 tanpa zeolit. Hal ini dikarenakan zeolit mampu menyerap senyawa organik pada permukaan fotokatalis, sehingga lebih cepat untuk mendegradasi polutan. Noorjahan, dkk. (2004)

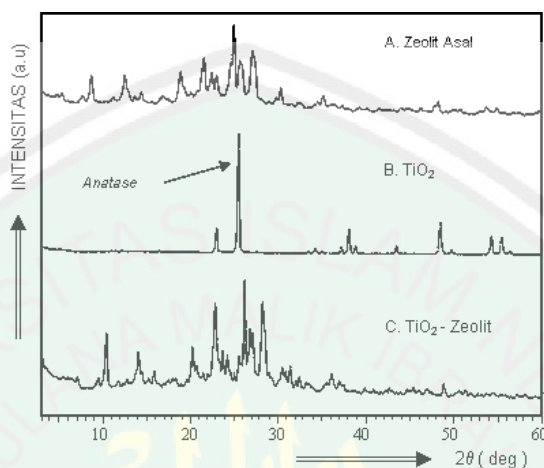
membuat film tipis yang terdiri dari TiO_2 dan zeolit (HZSM-5) dan dilakukan uji aktivitas fotokatalitik terhadap limbah fenol. Film tipis yang mengandung zeolit mempunyai aktivitas fotokatalitik yang lebih besar dari film tipis tanpa zeolit. Hal ini dikarenakan zeolit mampu menyerap senyawa fenol pada permukaan fotokatalis, sehingga akan lebih cepat didegradasi oleh material fotokatalis. Wang dan Li (2014) juga melakukan uji aktivitas fotokatalis dan adsorpsi TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit, dan melaporkan bahwa rekombinasi *electron-hole* pada TiO_2 dengan zeolit lebih kecil dibandingkan dengan TiO_2 tanpa zeolit. Penurunan *electron-hole* ditunjukkan pada Gambar 2.9.



Gambar 2.9 Perbandingan energi rekombinasi TiO_2 ; S/ TiO_2 /zeolit; TiO_2 /zeolit (Wang dan Li, 2014)

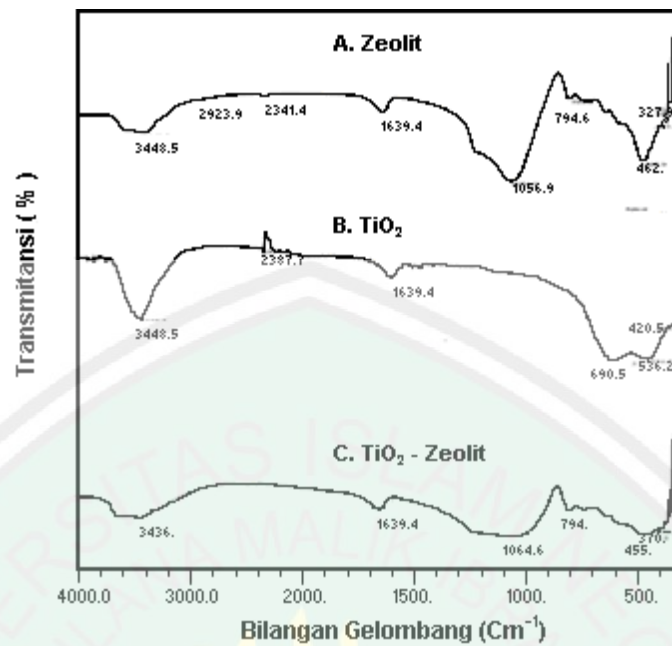
Hasil penelitian Utubira (2006), dihasilkan difraktogram dari karakterisasi XRD pada TiO_2 yang diimbangkan kedalam zeolit tidak terlihat refleksi TiO_2 secara jelas di daerah 2θ ($^\circ$) = 20 sampai 25 seperti pada Gambar 2.10, namun pada difraktogram terlihat puncak-puncak kecil yang mungkin disebabkan oleh refleksi TiO_2 anatas pada daerah 2θ ($^\circ$) = 35,78 ; 48,54 dan 56,91 dengan jarak $d =$

2,50 ; 1,87 ; dan 1,61 Å (difraktogram C) yang sebelumnya tidak muncul pada difraktogram (A).



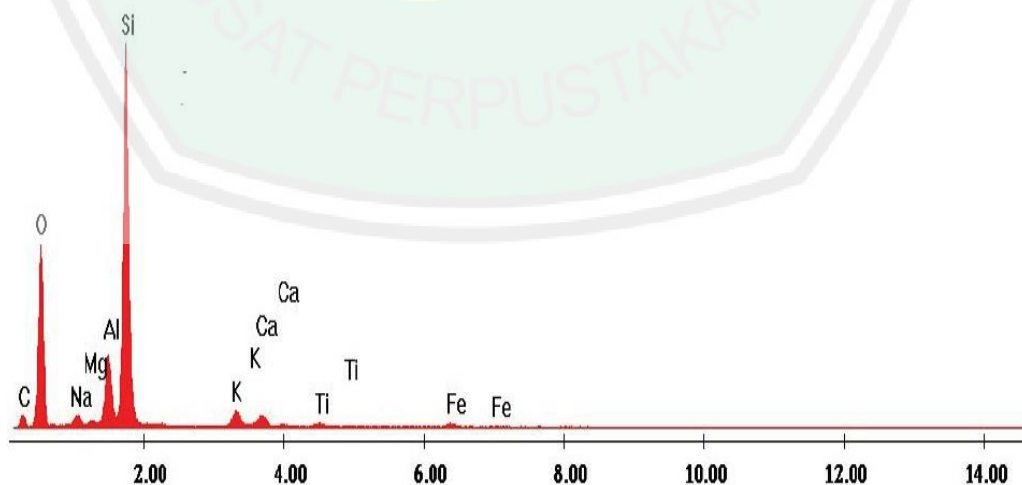
Gambar 2.10 Difraktogram (A) zeolit alam; (B) TiO₂; (C) TiO₂-zeolit (Utubira, 2006)

Karakterisasi gugus-gugus fungsional pada TiO₂-zeolit yang juga dilakukan oleh Utubira (2006), dengan menggunakan FTIR terlihat pada Gambar 2.11 bahwa serapan pada bilangan gelombang 3448 cm⁻¹ karakterisasi untuk rentangan O-H oktahedral (O-H ulur) yang diperkuat oleh serapan pada bilangan gelombang 1639 cm⁻¹ yang merupakan rentangan O-H (O-H tekuk). Serapan pada bilangan gelombang 2992 cm⁻¹ yang merupakan vibrasi dari C-H, gugus C-H ini diduga berasal dari pengotor senyawa organik yang terperangkap pada kerangka zeolit. Serapan pada bilangan gelombang 1056 dan 794 cm⁻¹ merupakan regangan asimetris dan asimetris eksternal O-Si-O atau O-Al-O, dan serapan pada bilangan gelombang 462 cm⁻¹ adalah karakteristik vibrasi tekuk dari ikatan Al-O dan Si-O.



Gambar 2.11 Spektrum IR (A) Zeolit; (B) TiO₂; (C) TiO₂-zeolit (Utubira, 2006)

Ratiu, dkk. (2008) melakukan analisis unsur titanium menggunakan (EDX), menunjukkan bahwa partikel titanium telah tersebar pada sampel, dapat diamati pada Gambar 2.12 dimana titanium terdeteksi memiliki berat 6,03%.

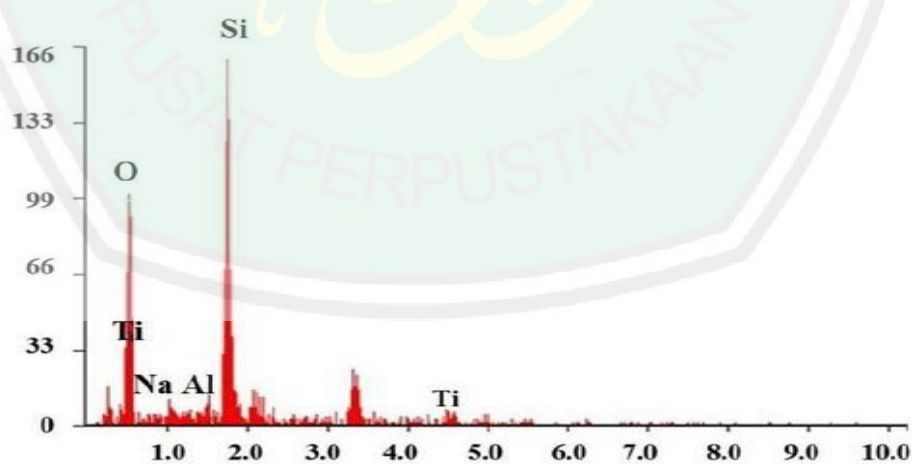


Gambar 2.12 Hasil analisis EDX pada Z-TiO₂-SG (Ratiu, dkk., 2009)

Tabel 2.1 Komposisi senyawa pada sampel Z-TiO₂-SG (Ratiu, dkk., 2009)

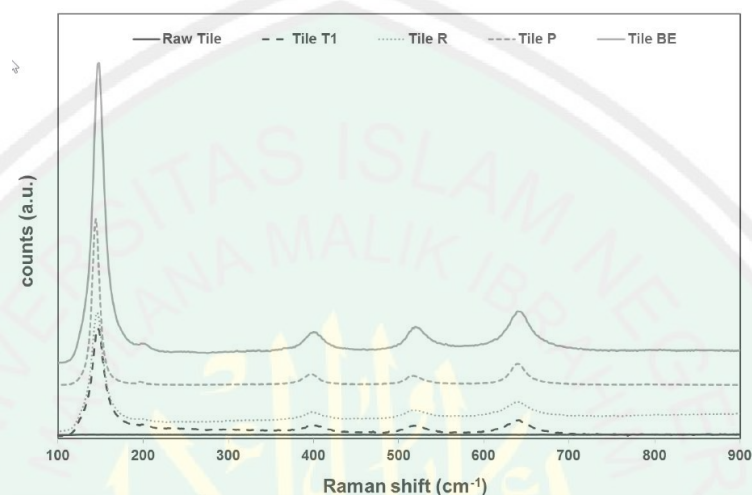
Element	Weight (%)	Atom (%)
CK	12,85	21,24
OK	36,69	45,53
NaK	0,72	0,62
AlK	5,10	3,75
SiK	34,56	24,43
KK	2,16	1,10
CaK	1,04	0,52
TiK	6,03	2,50
FeK	0,85	0,30
Total	100,00	100,00

Begitu pula dengan yang dilakukan oleh Alwash, dkk. (2012) melaporkan bahwa pada umumnya zeolit mampu mempertahankan struktur aslinya. Penambahan TiO₂ sebanyak 15% pada Na-zeolit Y. Titanium terdeteksi pada permukaan Na-zeolit Y dari analisis EDX, dapat dilihat seperti pada Gambar 2.13.

Gambar 2.13 Hasil analisis EDX pada 15% TiO₂-NaY (Alwash, dkk., 2013)

Sarno, (2016) juga berhasil melakukan penelitian fotokatalis TiO₂/zeolit. Hasil karakterisasi dengan spektroskopi Raman menunjukkan munculnya pita

pada rentang 144; 396; 514; dan 637 cm^{-1} juga sedikit pada rentang 195 cm^{-1} seperti ditunjukkan pada Gambar 2.14, yang merupakan modus vibrasi raman aktif titanium dengan fasa anatase.



Gambar 2.14 Spektrum Raman TiO_2 pada rentang 100-900 cm^{-1} (Sarno, 2016)

2.5 Sintesis TiO_2 /zeolit dengan Metode Sol-Gel

Proses sol-gel dapat didefinisikan sebagai proses pembentukan senyawa anorganik melalui reaksi kimia dalam larutan pada suhu rendah. Proses tersebut terjadi perubahan fasa dari suspensi koloid (sol) membentuk fasa cair kontinyu (gel) (Fernandez, 2011). Tahapan dari proses sintesis dengan metode sol-gel, ialah:

a. Hidrolisis

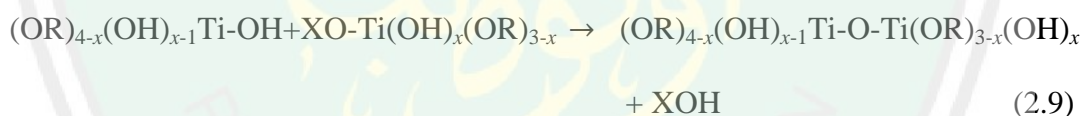
Pada tahap pertama logam prekursor (alkoksida) dilarutkan dalam alkohol dan terhidrolisis dengan penambahan air pada kondisi asam, netral atau basa menghasilkan sol koloid. Faktor yang sangat berpengaruh terhadap proses hidrolisis adalah rasio air/prekursor dan jenis katalis hidrolisis yang digunakan.

Peningkatan rasio pelarut/prekursor akan meningkatkan reaksi hidrolisis yang mengakibatkan reaksi berlangsung cepat sehingga waktu gelasi lebih cepat (Fernandez, 2011). Reaksi kimia yang terjadi dapat dilihat pada Persamaan 2.8.



b. Kondensasi

Tahapan ini terjadi proses transisi dari sol menjadi gel. Reaksi kondensasi melibatkan senyawa hidroksil untuk menghasilkan polimer dengan ikatan M-O-M. Pada berbagai kasus, reaksi ini juga menghasilkan produk samping berupa air atau alkohol (Fernandez, 2011). Reaksi kimia yang terjadi dinyatakan pada Persamaan 2.9.



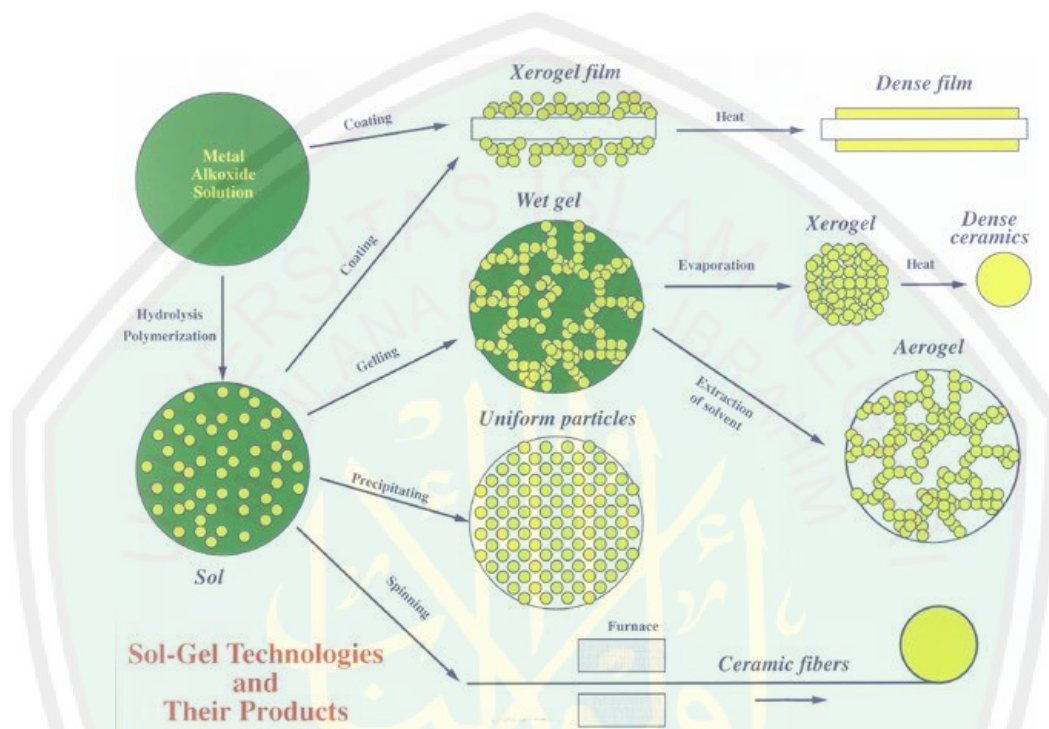
c. Pemeraman (*Aging*)

Setelah reaksi hidrolisis dan kondensasi, dilanjutkan dengan proses pematangan gel yang terbentuk. Proses ini lebih dikenal dengan proses *aging*. Pada proses pematangan ini, terjadi reaksi pembentukan jaringan gel yang lebih kaku, kuat, dan menyusut di dalam larutan (Fernandez, 2011).

d. Pengeringan

Tahapan terakhir adalah proses penguapan larutan dan cairan yang tidak diinginkan untuk mendapatkan struktur sol-gel yang memiliki luas permukaan

yang tinggi (Fernandez, 2011). Proses pembuatan sol-gel dalam sintesis zeolit dilakukan untuk mendapatkan xerogel yang akan dijadikan serbuk dengan proses pemanasan. Hal ini dijelaskan dalam Gambar 2.15.



Gambar 2.15 Proses sol-gel (Widodo, 2010)

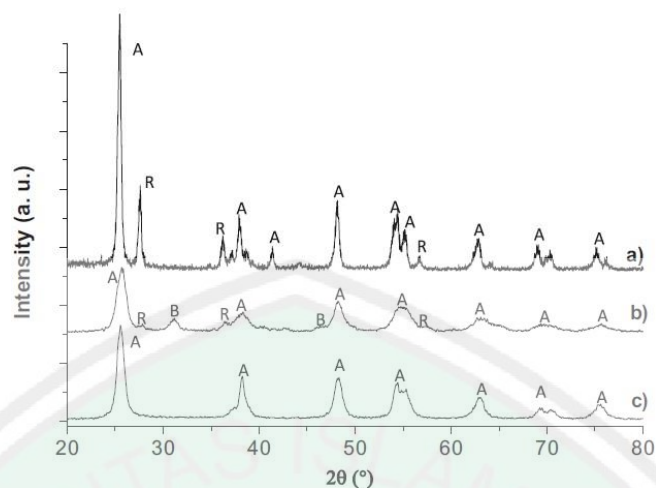
Metode sol-gel dikenal sebagai salah satu metode sintesis nanopartikel yang cukup sederhana dan mudah. Metode ini merupakan salah satu “*wet method*” karena pada prosesnya melibatkan larutan sebagai mediana. Pada metode sol-gel, sesuai dengan namanya larutan mengalami perubahan fase menjadi sol (koloid yang mempunyai padatan tersuspensi dalam larutannya) dan kemudian menjadi gel (koloid tetapi mempunyai fraksi solid yang lebih besar daripada sol) (Fernandez, 2011).

Kelebihan metode sol-gel dibandingkan dengan metode sintesis yang lain, antara lain (Fernandez, 2011):

- a. Kehomogenan yang lebih baik
- b. Kemurnian yang tinggi
- c. Suhu relatif rendah
- d. Tidak terjadi reaksi dengan senyawa sisa
- e. Kehilangan bahan akibat penguapan dapat diperkecil
- f. Mengurangi pencemaran udara

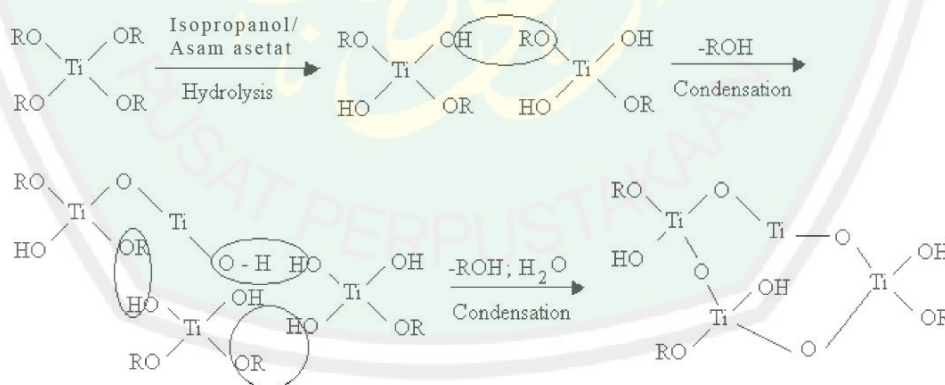
Sintesis TiO_2 dengan metode sol-gel dapat dimodifikasi dengan penambahan zat aditif yang dapat menurunkan laju hidrolisis, sehingga TIP sebagai prekursor dapat mempertahankan logam alkoksi. Rilda, dkk. (2010) menggunakan dietanol diamin (DEA) sebagai sebagai penghomogen dan/atau penghambat terhidrolisisnya prekursor sehingga mempertahankan kereaktifan logam alkoksi untuk pembentukan sol yang lebih stabil, sehingga proses hidrolisis dan kondensasi untuk pembentukan polimer Ti-O-Ti semakin optimal.

Escobar, dkk. (2010) melakukan penelitian terkait penambahan asam terhadap proses sintesis TiO_2 , dengan melakukan perbandingan antara penambahan asam klorida (HCl) dan asam asetat (CH_3COOH). Terlihat pada Gambar 2.16 difraktogram XRD pada sampel TiO_2 dengan preparasi penambahan asam asetat menghasilkan hampir 100% berada pada fasa kristal anatas. Hal ini dijelaskan bahwa penambahan asam pada preparasi sintesis dapat berfungsi sebagai inhibitor pada proses hidrolisis-kondensasi, selain itu juga sebagai ligan pada polimer dari prekursor yang dapat mengarahkan pada fasa kristal tunggal, yaitu anatas.



Gambar 2.16 Difraktogram XRD (a) TiO₂-P25; (b) TiO₂-HCl; (c) TiO₂-CH₃COOH (Escobar, dkk., 2010)

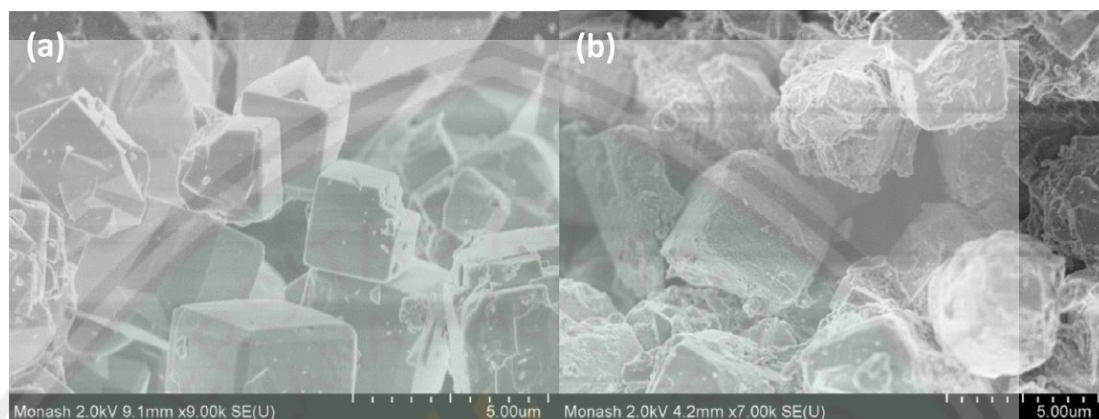
Isopropanol sebagai pelarut dengan penambahan zat aditif asam asetat glasial, dapat dilakukan untuk proses sintesis TiO₂ dengan metode sol-gel. Mekanisme reaksi dari proses tersebut, seperti terlihat pada Gambar 2.17.



Gambar 2.17 Mekanisme reaksi hidrolisis-kondensasi metode sol-gel

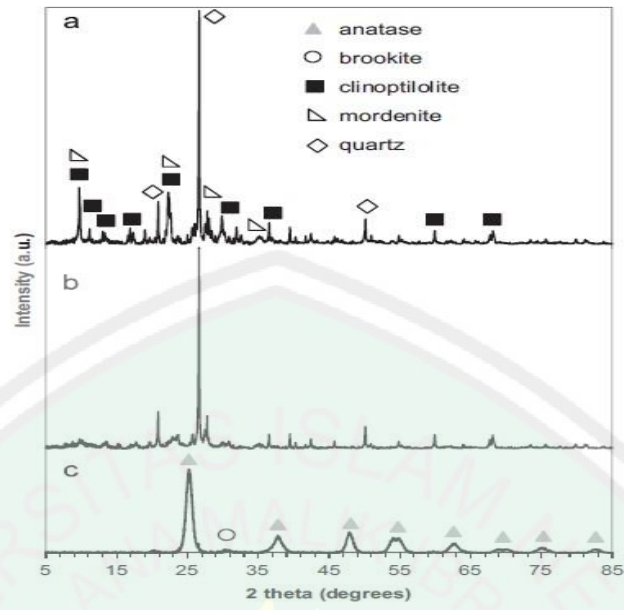
Chong, dkk. (2014) melakukan sintesis TiO₂-Zeolit dengan metode sol-gel melaporkan bahwa dari hasil karakterisasi dengan analisis SEM-EDX terlihat pada Gambar 2.18 bahwa TiO₂ terdispersi pada permukaan zeolit, terlihat bahwa

terjadi perubahan morfologi pada permukaan dari zeolit murni sebelum terdispersi oleh TiO_2 .



Gambar 2.18 Morfologi permukaan zeolit (a) SEM zeolit murni, (b) SEM zeolit setelah pemuatan TiO_2 (Chong, dkk., 2014)

Liu, (2014) pada penelitian sebelumnya melakukan sintesis fotokatalis dengan menggunakan metode sol-gel dan melaporkan bahwa hasil karakterisasi pada suhu $550\text{ }^\circ\text{C}$ menunjukkan TiO_2 berada pada fasa anatase yang ditunjukkan oleh Gambar 2.19. Gambar 2.19 menunjukkan puncak difraksi XRD dengan $2\theta\text{ (}^\circ\text{)} = 25,3; 37,8; 47,9; 54,9; 62,5; 68,9; 70,2; \text{ dan } 75,1$. Alwash, (2013) melaporkan bahwa dengan menggunakan metode impregnasi tidak ada peak yang muncul pada daerah serapan khas yang dimiliki oleh fasa anatase dengan suhu kalsinasi $550\text{ }^\circ\text{C}$. Fasa anatase tampak pada suhu kalsinasi $700\text{--}800\text{ }^\circ\text{C}$, dengan suhu kalsinasi yang cukup tinggi. Berdasarkan hal tersebut metode sol-gel dianggap metode sintesis TiO_2 /zeolit yang lebih efisien.



Gambar 2.19 Difraktogram XRD (a) Zeolit, (b) TiO₂/Zeolit, (c) TiO₂ (Liu, 2014)

BAB III

METODOLOGI

3.1 Waktu dan Tempat Penelitian

Penelitian ini dilaksanakan pada bulan April–Juli 2017 di Laboratorium Kimia Anorganik dan Laboratorium Instrumentasi Universitas Islam Negeri Maulana Malik Ibrahim Malang.

3.2 Alat dan Bahan

3.2.1 Alat-alat

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah seperangkat alat gelas, *hot plate*, *stirer*, neraca analitik, oven, XRD, spektroskopi Raman, SEM-EDX dan FTIR.

3.2.2 Bahan-bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam, isopropanol (*p.a*), HCl 6M, asam asetat glasial (*p.a*), titanium (IV) isopropoksida (Sigma Aldrich), pH *universal* (Merck).

3.3 Rancangan Penelitian

Penelitian yang akan dilakukan adalah untuk mengetahui karakteristik struktur dan serapan TiO₂ yang dilapiskan pada zeolit dengan variasi perbandingan komposisi TiO₂ : zeolit menggunakan metode sol-gel. Sintesis TiO₂/zeolit menggunakan metode sol-gel dengan perbandingan komposisi

TiO₂:zeolit (%) = 0:100, 5:95, 10:90, 20:80, 30:70 dan 100:0. Suhu kalsinasi sintesis dilakukan pada 550 °C. TiO₂/zeolit yang dihasilkan akan dikarakterisasi struktur dan serapan sinarnya dengan XRD, SEM-EDX, spektroskopi Raman, dan FTIR.

3.4. Tahapan Penelitian

1. Aktivasi Zeolit
2. Sintesis TiO₂/zeolit metode sol-gel dengan variasi komposisi
3. Karakterisasi dilakukan menggunakan instrumen XRD, FTIR, spektroskopi Raman, dan SEM-EDX
4. Analisis data

3.5. Prosedur Penelitian

3.5.1. Aktivasi Zeolit

Zeolit direndam menggunakan 400 mL HCl 6 M (tanpa pengadukan) selama 4 jam. Kemudian endapannya disaring dan dicuci dengan akuades sampai pH netral. Sampel zeolit dikeringkan selama 12 jam pada suhu 80 °C dan dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 5 jam.

3.5.2 Sintesis TiO₂ Yang Diembankan Pada Zeolit dengan Variasi Komposisi TiO₂/Zeolit

Fotokatalis disintesis dengan prekursor Titanium (IV) isopropoksida (TIP), 5,72 mL TIP ditambahkan kedalam 34,32 mL isopropanol, diaduk dengan *stirrer* selama 30 menit untuk menghasilkan larutan TIP. Larutan TIP dalam isopropanol ditambahkan kedalam 5,71 mL CH₃COOH (Asam asetat glasial), kemudian

diaduk dengan *stirrer* sampai larutan menjadi gel. Setelah terbentuk gel kemudian ditambahkan pada zeolit dalam 100 mL air sambil diaduk dengan *stirrer* secara bersamaan selama 4 jam. Larutan sampel didiamkan selama 24 jam untuk proses *aging* atau pematangan, kemudian larutan disaring lalu dikeringkan dengan suhu 100 °C pada oven selama 3 jam untuk proses dehidrasi atau menghilangkan pelarut. Hasil pengeringan lalu dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 4 jam. Serbuk fotokatalis TiO₂/zeolit yang dihasilkan kemudian dikarakterisasi.

3.5.3. Analisis Karakteristik dengan Difraksi Sinar-X

Difraksi sinar-X digunakan untuk mengidentifikasi fasa dan menentukan kiralinitas sampel. Difraktometer yang digunakan adalah XRD, merk Philip, tipe: X'pert Pro. Pengukuran dilakukan dengan Cu sebagai logam target, teisi generator 40 kV dan arus 30 mA, sehingga dihasilkan radiasi Cu-K α . Pola difraksi sinar-X merepresentasikan intensitas puncak difraksi sebagai fungsi dari sudut 2 θ pada rentang 5-90°.

Data yang diperoleh dari karakterisasi dengan XRD adalah difaktogram yang akan dibandingkan dengan standar JCPDS-TiO₂ anatase (JCPDS No. 211272) untuk mengetahui karakteristik dari TiO₂ setelah diembankan pada zeolit. Proses *refinement* juga akan dilakukan terhadap XRD menggunakan program Rietica dengan metode Le-Bail untuk mendapatkan data kristalografi dari material baru yang dihasilkan. Berdasarkan difaktogram yang diperoleh dari hasil difraksi sinar-X, maka ukuran partikel rata-rata TiO₂ hasil sintesis dapat ditentukan dengan menggunakan persamaan Debye-Scherrer yang dinyatakan pada Persamaan 3.1

$$D = (K \lambda) / (\beta \cos \theta) \quad (3.1)$$

Dengan D adalah ukuran partikel (nm), λ adalah panjang gelombang radiasi, K adalah konstanta (0,9), dan β adalah luas setengah puncak *Full Width at Half Maximum* (FWHM, radian)

3.5.4. Analisis Karakterisasi dengan SEM-EDX

Analisa SEM-EDX digunakan untuk mendapatkan informasi pendukung untuk mengetahui keadaan yang dapat terlihat pada morfologi permukaan dan distribusi ukuran partikel dari zat hasil sintesis dan juga komposisi unsur zat hasil sintesis. Preparasi untuk analisa SEM-EDX dimulai dari pelet dengan ukuran diameter 1 cm dan ketebalan 1 mm yang dipotong dengan ukuran $\pm 5 \text{ nm} \times 5 \text{ nm}$ (ukuran dapat disesuaikan dengan bahan yang tersedia). Bagian permukaan yang lebih halus dipilih untuk bagian atasnya, kemudian bagian bawah ditempelkan ke dudukan preparat dengan perekat yang bersifat konduktor (pasta perak). Pada bagian atas dilapisi dengan lapisan tipis emas-paladium (Au : 80%; Pd : 20%) setebal 400 Å. Tujuan pelapisan adalah agar bahan yang dipotret menjadi penghantar listrik. Karakterisasi SEM dilakukan pada produk yang telah disintesis kemudian dianalisa menggunakan Instrumen SEM dengan perbesaran 3.000–20.000 kali dan dengan EDX dengan perbesaran 3000 kali.

3.5.5. Analisis Karakterisasi dengan Spektroskopi Raman

Spektroskopi Raman ditujukan untuk analisis kualitatif dan kuantitatif terhadap komponen dengan kadar yang sangat kecil. Di samping itu, spektroskopi

Raman juga ditujukan untuk elusidasi struktur, jarang dipakai untuk analisis kuantitatif. Jangkauan sampel yang dapat dianalisis adalah organik, anorganik dan biologi. Karakterisasi menggunakan spektroskopi Raman bertujuan untuk mengetahui modulus vibrasi khas TiO_2 anatas. Pengukuran spektroskopi Raman menggunakan sumber sinar laser hijau dengan panjang gelombang 532 nm dengan rentang pengukuran antara 50-1500 cm^{-1} . Perubahan lokal struktur diamati dari perubahan modulus vibrasi Raman senyawa produk sintesis. Jenis modulus vibrasi TiO_2 yang dirangkum dalam Tabel 3.1.

Tabel 3.1 Karakteristik modulus vibrasi TiO_2 (Ohsaka, 1978) dan modulus vibrasi zeolit jenis mordenit (Mozgawa, 2001; dan Knight, dkk., 1989)

Jenis vibrasi	Bilangan gelombang (cm^{-1})
TiO_2 anatas (<i>single crystal</i>)	144 (E_g), 197 (E_g), 399 (B_{1g}), 513 (A_{1g}), 519 (B_{1g}), dan 639 (E_g)
Ti-O <i>stretching</i>	513 (A_{1g}), 519 (B_{1g})
Zeolit (<i>mordenite</i>)	390, 398 dan 468

3.5.4. Analisis Karakteristik dengan FTIR

Karakterisasi dengan FTIR dilakukan terhadap TiO_2 /zeolit hasil sintesis dan senyawa. Mula-mula cuplikan dihaluskan hingga menjadi serbuk yang halus menggunakan mortar agate dengan dicampurkan padatan KBr, kemudian ditempatkan pada preparat dan ditekan dengan alat *pressing* untuk membentuk pelet. Selanjutnya ditempatkan pada *sample holder* dan dianalisa menggunakan FTIR. Karakteristik spektrum IR zeolit alam yang dirangkum dalam Tabel 3.2.

Tabel 3.2 Karakteristik spektrum IR zeolit alam. (Heraldry, 2003 dan Suroto, 2004 dalam Srihapsari, 2006)

Jenis vibrasi	Bilangan gelombang (cm^{-1})	
	Zeolit alam	Referensi
Vibrasi ulur O-H	3448	3442 dan 3448
Vibrasi ulur T-O ₄	1053	1055; 1043; dan 1052
Vibrasi tekuk T-O pada ikatan eksternal (kerangka zeolit)	779	796; 777; dan 794
Vibrasi tekuk T-O	466	445; 447; dan 470

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Preparasi dan Aktivasi Zeolit Alam

Zeolit alam pada umumnya masih terdapat banyak sekali ion pengotor, sehingga diperlukan aktivasi yang bertujuan untuk mengurangi pengotor tersebut (Chong, dkk., 2009). Zeolit alam yang akan diaktivasi perlu diayak dengan ukuran 200 mesh, hal ini bertujuan untuk menyeragamkan ukuran zeolit. Perendaman zeolit dilakukan dalam akuades untuk menghilangkan ataupun mengurangi debu dan pengotor yang larut dalam air (akuades), kemudian disaring dan dilanjutkan dengan pengeringan dalam oven untuk menghilangkan pelarut dan pengotor lainnya. Tahap selanjutnya ialah perendaman zeolit dalam HCl 6 M yang bertujuan untuk melarutkan logam pengotor dimana logam terbesar pada zeolit alam adalah logam besi (Fe) (Botianovi, 2012 dan Svehla, 1990)

Zeolit yang direndam pada HCl tersebut, menghasilkan filtrat berwarna kuning jingga yang diduga dihasilkan dari pelarutan logam pengotor Fe (Svehla, 1990). Setelah direndam pada HCl yang bersifat asam, zeolit dicuci dengan akuades hingga pH filtrat netral. Dalam penelitian ini TiO_2 /zeolit disintesis dengan metode sol-gel, zeolit alam yang digunakan berasal dari Bandung. Chasanah, (2017) telah melakukan karakterisasi pada zeolit alam yang berasal dari Bandung. Karakterisasi yang dilakukan meliputi pola difraksi sinar-X menggunakan XRD, dan karakter khas modus vibrasi menggunakan FTIR dan spektroskopi Raman, diketahui bahwa zeolit alam tersebut adalah jenis modernit.

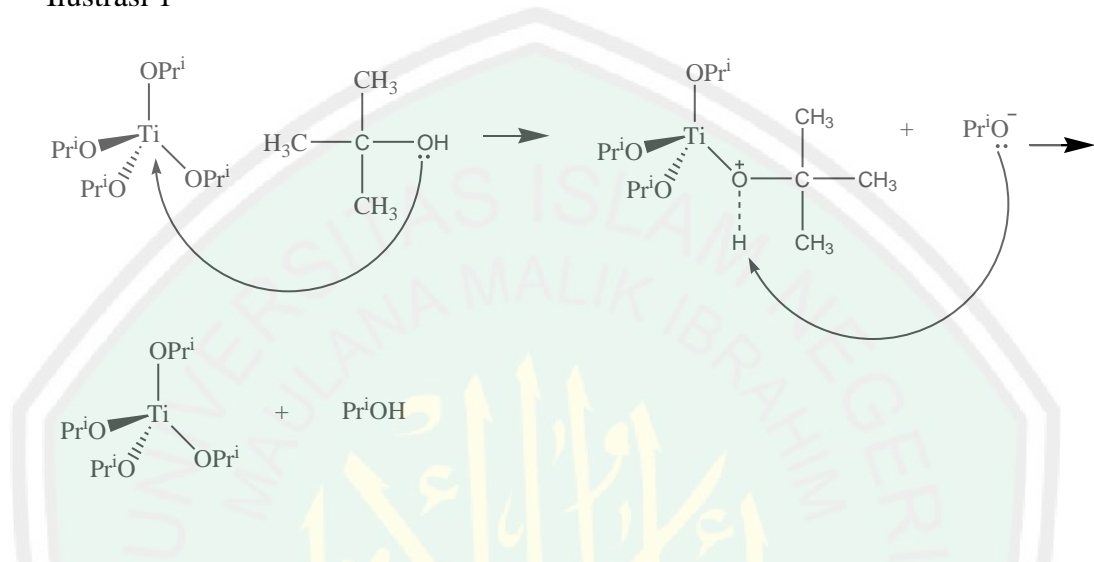
4.2 Sintesis dan Karakterisasi Material TiO₂ dengan Metode Sol-Gel

Sintesis material fotokatalis TiO₂ yang dilakukan dengan metode sol-gel menggunakan titanium isopropoksida (TTIP) sebagai prekursor. Metode sol-gel digunakan karena dianggap memiliki homogenitas yang cukup tinggi pada proses sintesisnya. TTIP sangat mudah untuk terhidrolisis oleh air sehingga laju hidrolisis menjadi sangat cepat dan sulit dikontrol, oleh karena itu digunakan isopropanol sebagai pelarut yang dapat berkompetisi dengan air sebagai nukleofil yang mana nukleofilitas isopropanol lebih lemah daripada air (Fessenden dan Fessenden, 1986). Selain itu, isopropanol digunakan karena setelah proses hidrolisis dapat mengalami pengendapan sehingga menghasilkan gel yang lebih kaku, dibandingkan dengan etanol atau metanol yang menghasilkan koloid setelah proses hidrolisis, faktor keruahan dari isopropanol juga dapat lebih optimal untuk menghasilkan jaringan polimer (Leaustic, dkk., 1988).

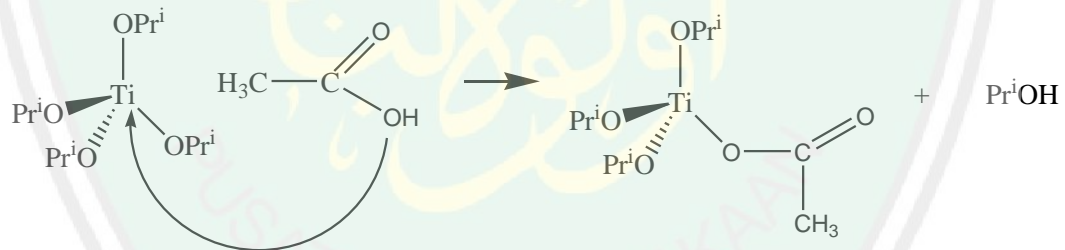
Penambahan air dilakukan pada proses hidrolisis yang sebelumnya telah ditambahkan asam untuk memodifikasi prekursor TTIP. Asam yang digunakan dalam penelitian ini adalah asam asetat yang dapat berperan sebagai nukleofil yang akan mengganti satu gugus isopropoksi pada TTIP menjadi gugus asetat, sehingga membentuk monomer Ti(OC(CH₃)₃(OAc)). Hal ini diakibatkan karena gugus isopropoksi kurang kuat sebagai ligan jika dibandingkan dengan ligan asetat, yang mana ligan asetat memiliki kemampuan untuk membentuk ligan jembatan (*bridging*), sehingga mengakibatkan tahap hidrolisis dengan air hanya gugus isopropoksi yang dapat dengan mudah lepas sedangkan ligan asetat tetap terikat pada titanium (Ti) (Nguyen, dkk., 2004). Mekanisme pembentukan

jaringan polimer (gel) pada saat proses sintesis ditunjukkan pada Gambar 4.1 dan Gambar 4.2.

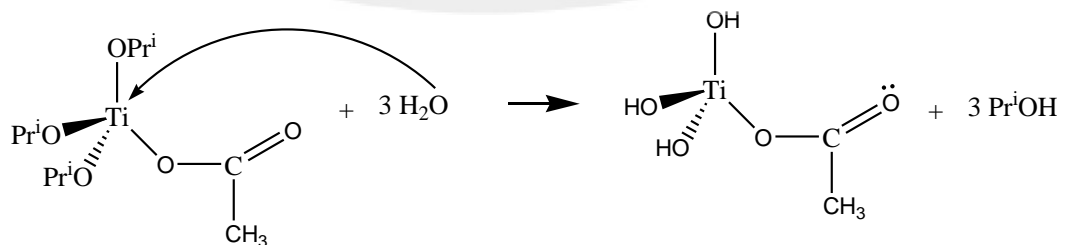
Ilustrasi 1



Ilustrasi 2

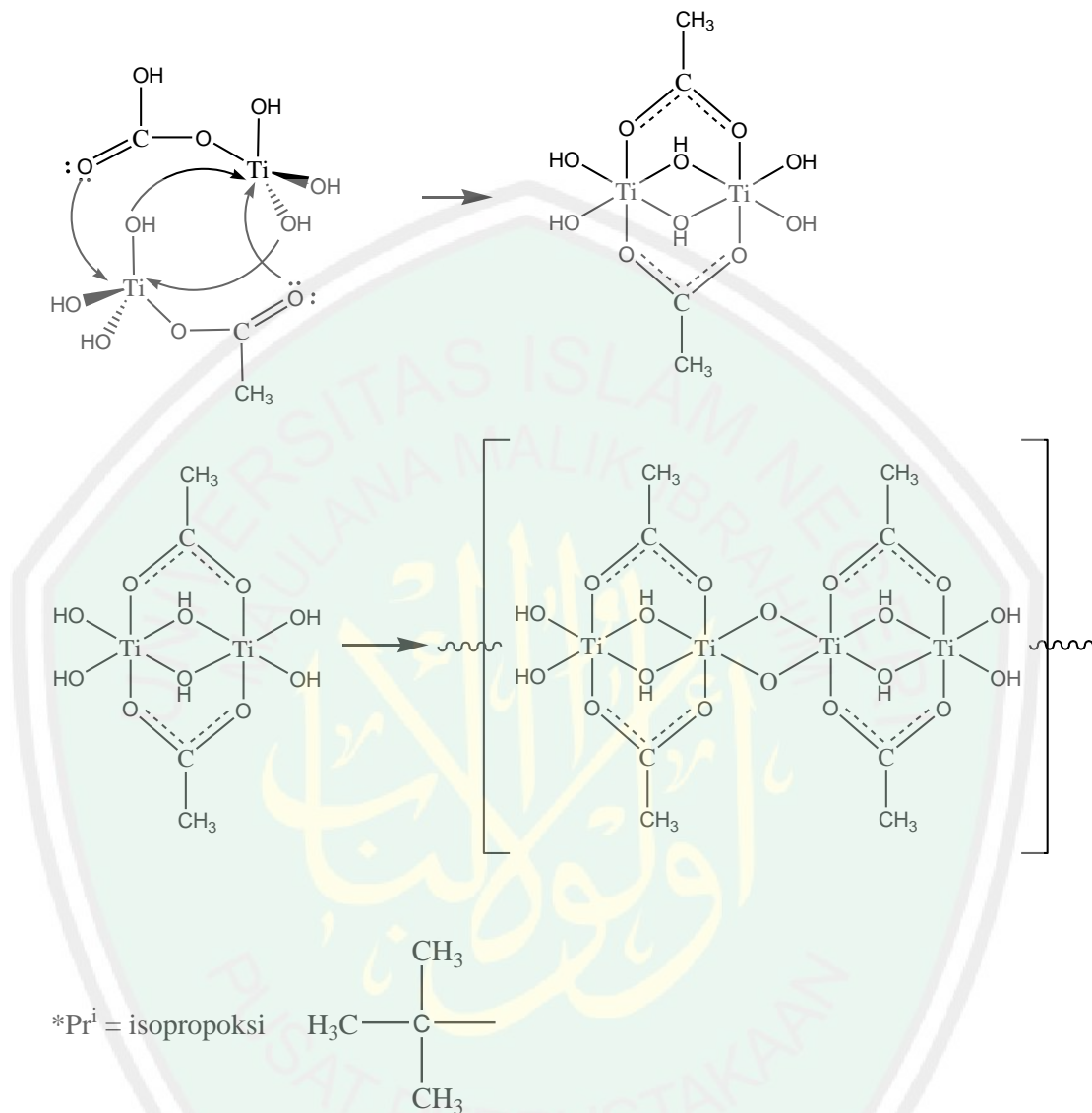


Ilustrasi 3



Gambar 4.1 Ilustrasi (1) mekanisme reaksi pelarutan menggunakan isopropanol; (2) Penambahan asam asetat; (3) Hidrolis menggunakan air (Leaustic, dkk., 1988; Fessenden dan Fessenden, 1986)

Ilustrasi 4



Gambar 4.2 Ilustrasi mekanisme reaksi pembentukan gel (polimerisasi) TiO₂ dengan metode sol-gel (Livage, dkk., 1988 ; Nolan, dkk., 2010 ; Brinker dan Scherer, 1990 ; Babounneau, dkk., 1988).

Hal ini juga dikarenakan kondisi hidrolisis yang asam memungkinkan muatan negatif gugus alkoksida terprotonasi oleh H⁺ dan mengakibatkan muatannya lebih positif. Muatan gugus alkoksida yang lebih positif menyebabkan atom pusat yaitu ion logam Ti menolak gugus alkoksida dan cenderung berikatan dengan gugus -OH sehingga menghasilkan produk dalam bentuk monomer

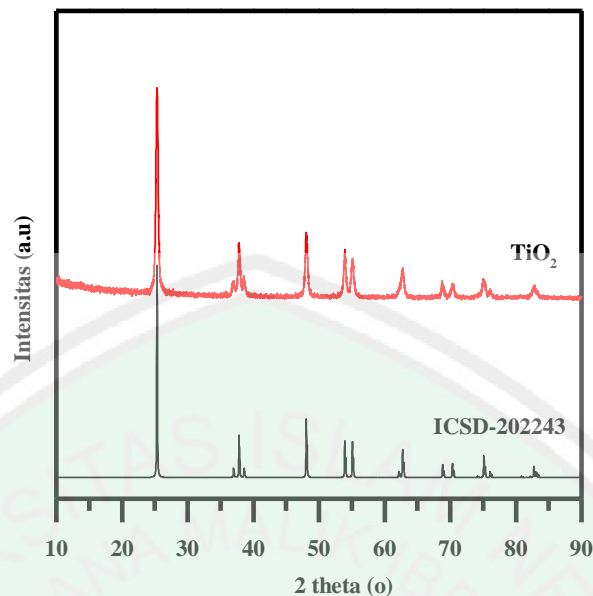
Ti(OH)₃(OAc). Pada tahap selanjutnya yaitu polimerisasi, terjadi reaksi penggabungan antara monomer Ti(OH)₃(OAc) dengan monomer Ti(OH)₃(OAc) yang lain membentuk dimer Ti₂(OH)₆(OAc)₂ yang selanjutnya penggabungan dimer secara berkelanjutan yang membentuk rantai polimer.

Hasil sintesis dengan bentuk gel yang diperoleh kemudian dioven pada suhu 100 °C selama 3 jam untuk menguapkan pelarut, kemudian dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 4 jam untuk mendekomposisi senyawa organik, membentuk fasa kristal, dan membuat gel menjadi serbuk.

4.3 Karakterisasi Hasil Sintesis TiO₂

Karakterisasi dilakukan pada TiO₂ hasil sintesis dengan menggunakan XRD, FTIR, spektroskopi Raman, dan SEM-EDX. XRD digunakan untuk mengetahui karakter struktur dari pola difraksi sinar-X, FTIR dan spektroskopi Raman digunakan untuk menganalisa lokal struktur dan modus vibrasi, kemudian SEM-EDX digunakan untuk mengetahui morfologi hasil sintesis.

Hasil karakterisasi dengan XRD pola difraksi sinar-X TiO₂ dari hasil sintesis ditunjukkan oleh data difraktogram pada Gambar 4.3. Berdasarkan Gambar 4.3 dapat diketahui bahwa hasil sintesis menunjukkan TiO₂ 100% fasa anatas dengan membandingkan dengan difraktogram standar TiO₂ anatas (Standar ICSD-202243).



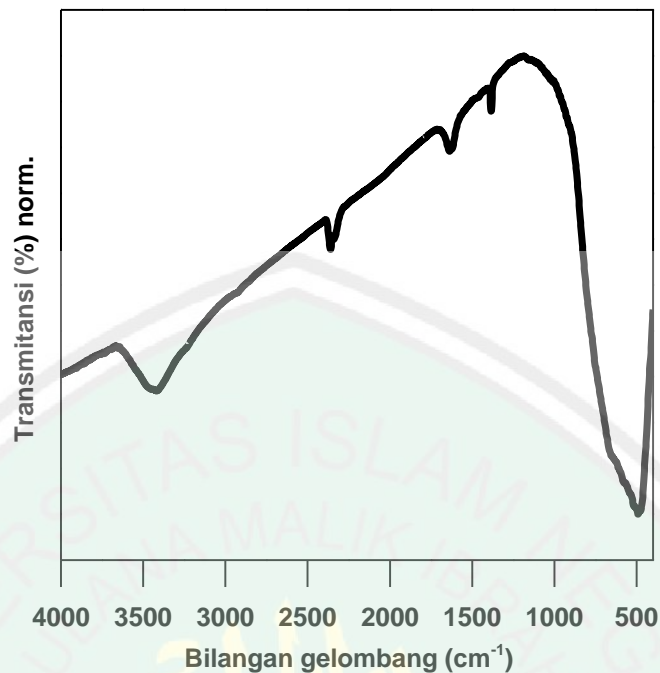
Gambar 4.3 Difraktogram TiO_2 hasil sintesis dengan metode sol-gel

Hasil karakterisasi menggunakan FTIR untuk mengetahui karakter khas gugus fungsi yang dimiliki oleh TiO_2 , pada hasil analisa *infrared* terlihat bahwa Spektrum IR yang memiliki intensitas tinggi berada pada bilangan gelombang 3418 cm^{-1} vibrasi ulur O-H regang; 1637 cm^{-1} vibrasi ulur O-H tekuk (Ti-OH); 1370 cm^{-1} vibrasi kisi TiO_2 , 667 cm^{-1} vibrasi ulur simetrik Ti-O-Ti, 490 cm^{-1} Vibrasi C-Br yang mungkin dihasilkan dari KBr pada waktu dipelet. Spektrum IR pada TiO_2 hasil sintesis dapat dilihat pada Gambar 4.4. Identifikasi jenis modus vibrasi IR ditampilkan pada Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Modus vibrasi FTIR TiO_2

Bilangan gelombang (cm^{-1})	Modus vibrasi
3418	Vibrasi ulur O-H regang
2358	Vibrasi ulur CO_2
1637	Vibrasi ulur O-H tekuk
1370	Vibrasi Kisi TiO_2
667	Vibrasi Ulur Simetrik Ti-O-Ti
490-500	Vibrasi ulur C-Br/C-I

*Sumber: Utubira, dkk., (2006); Mall, dkk., (2012); dan Surca, dkk., (2005).



Gambar 4.4 Spektrum IR TiO₂ hasil sintesis

Karakterisasi menggunakan spektroskopi Raman juga dilakukan untuk melengkapi dan menguatkan data modus vibrasi TiO₂. Hasil karakterisasi dengan spektroskopi Raman seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.5. Berdasarkan Gambar 4.5 dapat diketahui bahwa puncak Spektrum pada bilangan 144 cm⁻¹ terlihat dengan jelas. Selain itu, terdapat juga puncak Spektrum pada 398, 516, dan 637 cm⁻¹. Data yang didapatkan sangat mirip dengan data pada penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Ohsaka (1978). Puncak Raman pada bilangan gelombang 144 cm⁻¹ sangat kuat dan tajam ditambah dengan 3 puncak yang lain pada bilangan gelombang 398, 516, dan 637 cm⁻¹, bahwa pada bilangan gelombang tersebut adalah puncak spektrum khas dari anatase (Ohsaka, dkk., 1978).

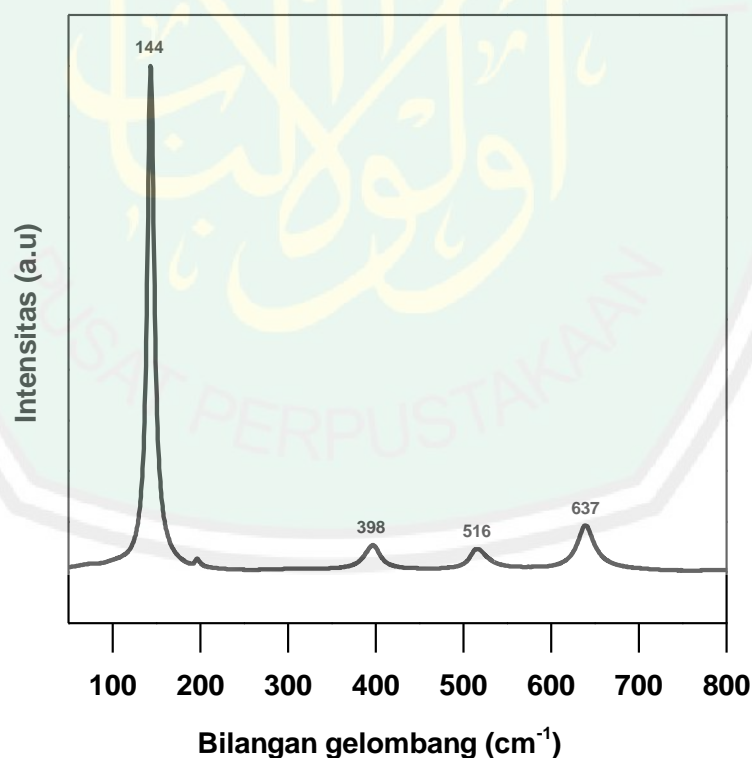
Modus vibrasi dari bilangan gelombang 144, 398, 516, dan 637 cm⁻¹ yang masing-masing berkaitan dengan E_g , B_{1g} , A_{1g} , dan E_g , yang merupakan dari modus

vibrasi khas dari anatase. Diketahui bahwa E_g adalah milik vibrasi ulur simetris dari O-Ti-O, B_{1g} adalah milik vibrasi tekuk simetris dari O-Ti-O, dan A_{1g} adalah milik vibrasi tekuk asimetris dari O-Ti-O (Ramasamy, dkk., 2013). Identifikasi jenis modus vibrasi Raman ditampilkan pada Tabel 4.2.

Tabel 4.2 Modus vibrasi Raman TiO_2

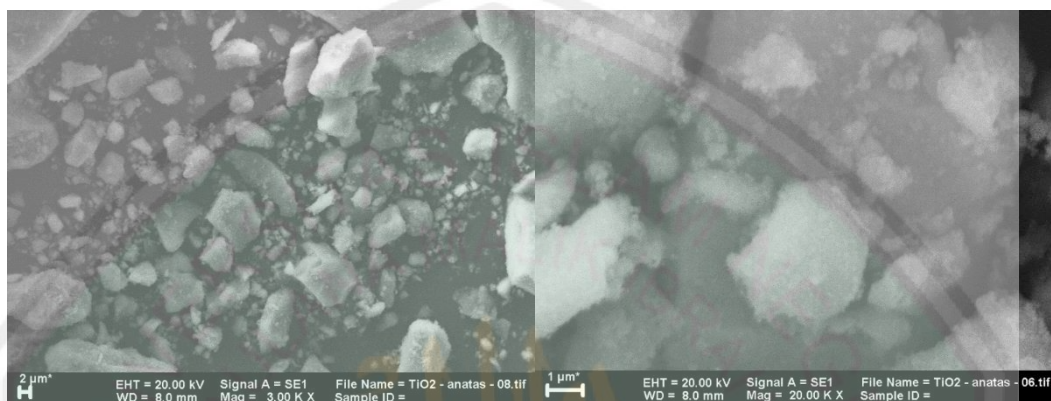
Bilangan gelombang (cm^{-1})	Bilangan gelombang (cm^{-1})*	Modus vibrasi*
144	144 (E_g)	Vibrasi ulur simetris O-Ti-O
398	394 (B_{1g})	Vibrasi tekuk simetris O-Ti-O
516	516 (A_{1g})	Vibrasi tekuk asimetris O-Ti-O
637	637 (E_g)	Vibrasi ulur simetris O-Ti-O

*Sumber: Ramasamy, dkk., (2013).



Gambar 4.5 Spektrum Raman TiO_2 hasil sintesis

Karakterisasi dengan SEM-EDX bertujuan untuk mengamati morfologi dan jumlah komposisi dari TiO_2 hasil sintesis. Analisa SEM dilakukan dengan perbesaran 3.000 kali dan 20.000 kali seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.6.



Gambar 4.6 Morfologi TiO_2 hasil sintesis

Terlihat bahwa secara kualitatif TiO_2 berbentuk seperti bulatan yang tidak beraturan dan terdapat beberapa bentuk yang ukurannya tidak sama, hal ini mungkin dikarenakan beberapa partikel yang relatif besar mengalami aglomerasi (penggumpalan) pada waktu sintesis. Analisa EDX dilakukan untuk mengetahui jumlah komposisi unsur penyusun hasil sintesis yang ditampilkan pada Tabel 4.3.

Tabel 4.3 Komposisi massa atom pada TiO_2 dari data EDX

Nama Atom	Nomor Atom	Komposisi Atom (% massa)
Ti	22	18,51
O	8	50,61
C	6	30,88

Pada Tabel 4.3 dapat diketahui bahwa komposisi hasil sintesis adalah unsur atom Ti, O, dan C. Munculnya atom C pada hasil sintesis TiO_2 yang terdeteksi bisa berasal dari gugus propoksi dari prekursor TTIP dan juga dari

pelarut isopropanol yang mungkin tidak terdekomposisi secara optimal pada saat kalsinasi.

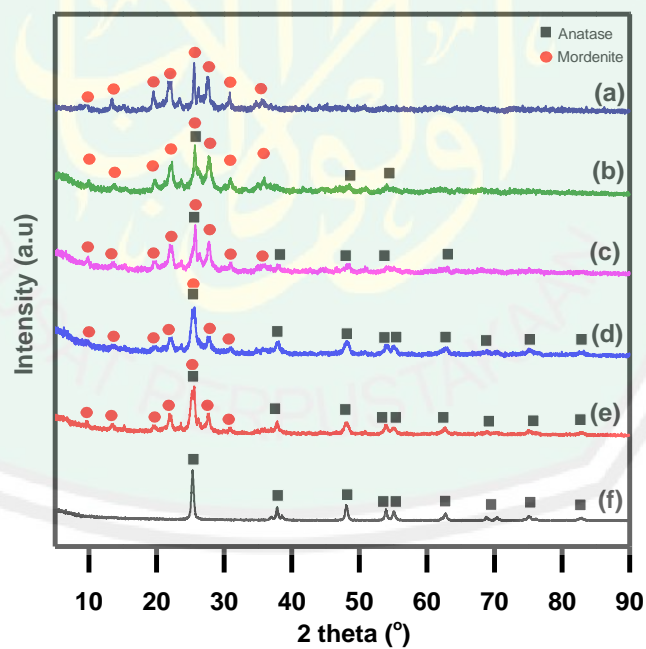
4.4 Karakterisasi Hasil Sintesis TiO₂/Zeolit

Material TiO₂ hasil sintesis yang diembankan dalam zeolit teraktivasi melalui pencampuran material TiO₂ ke dalam suspensi zeolit yang dilakukan dengan metode sol-gel dan kalsinasi pada suhu 550 °C selama 4 jam (Chong, dkk., 2009). Pengembanan material TiO₂ pada zeolit divariasikan dengan komposisi masing-masing 5:95, 10:90, 20:80, dan 30:70%. Proses sintesis dengan adanya pengembanan zeolit tersebut pembentukan jaringan gel yang lebih kaku, kuat, dan menyusut di dalam larutan. Selain itu, pada tahapan ini dapat terjadi proses kondensasi maupun polimerasi yang lebih optimal untuk menghasilkan lebih banyak jaringan polimer Ti-O-Ti yang ditandai dengan semakin kaku gel yang terbentuk seiring dengan banyaknya jumlah zeolit sebagai material penyangga.

Tahapan kalsinasi merupakan tahapan akhir yang dilakukan untuk menghilangkan kemungkinan masih adanya molekul organik dari produk akhir yang dihasilkan, sekaligus menyelesaikan tahapan kristalisasi atau mengubah bentuk amorf Ti-O-Ti menjadi kristalin TiO₂ (Su, dkk., 2004). Menurut Chong dan Jin (2012), proses kalsinasi juga bertujuan untuk pembentukan ikatan antara Ti-O-Ti dengan mineral zeolit alam menghasilkan ikatan Ti-O-Si, namun pada hasil penelitian ini masih berupa dugaan. Hal ini dikarenakan proses kalsinasi (pemanasan suhu tinggi) dapat menyebabkan jaringan polimer Ti-O-Ti gel mengalami penyusutan dan melekat atau terdispersi pada permukaan zeolit alam pada bagian yang mengandung silika.

Berdasarkan hasil sintesis dan pengembangan yang dilakukan, didapatkan sebelum kalsinasi berwarna putih keabu-abuan menjadi berwarna oranye kecoklatan setelah dilakukan kalsinasi dengan suhu 550 °C selama 4 jam. Hal ini dimungkinkan, kandungan pengotor besi (Fe) yang masih ada dalam zeolit alam teroksidasi sehingga menyebabkan warna komposit yang dihasilkan berwarna oranye kecoklatan.

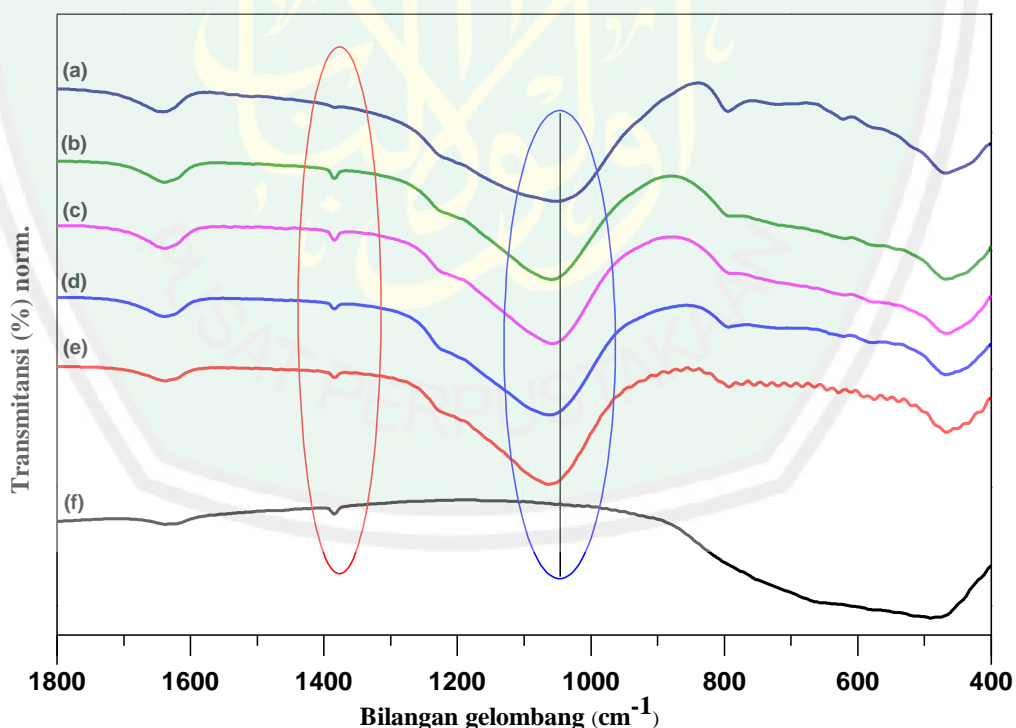
Hasil karakterisasi dengan XRD pada TiO_2 yang telah diimbangkan pada zeolit ditunjukkan pada Gambar 4.7. Terlihat pada difraktogram bahwa semakin banyak TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit, semakin besar pula puncak-puncak khas TiO_2 yang terlihat, dalam hal ini puncak TiO_2 anatase masih dapat terlihat.



Gambar 4.7 Difraktogram : (a) zeolit mordenit (Chasanah, 2017); (b) TiO_2 /zeolit 5:95%; (c) TiO_2 /zeolit 10:90%; (d) TiO_2 /zeolit 20:80%; (e) TiO_2 /zeolit 30:70%; (f) TiO_2

Puncak khas TiO_2 teridentifikasi dengan intensitas puncak tertinggi pada posisi 2θ : $25,29^\circ$. Intensitas puncak yang relatif tinggi pada 2θ : $25,60^\circ$ adalah puncak khas mordenit (zeolit) sedangkan intensitas puncak pada $25,29^\circ$ adalah puncak khas TiO_2 anatas dan ini sulit dibedakan karena nilai 2θ keduanya memiliki puncak difraktogram yang sangat berdekatan.

Analisa karakter gugus fungsi TiO_2 terembedding pada zeolit juga dilakukan dengan menggunakan FTIR. Spektrum *infrared* dari TiO_2 terembedding pada zeolit dapat dilihat pada Gambar 4.8. Analisa gugus fungsi pada komposisi 5:95% hingga 30:70% tidak menghasilkan perubahan pola vibrasi dari TiO_2 dan zeolit yang signifikan.



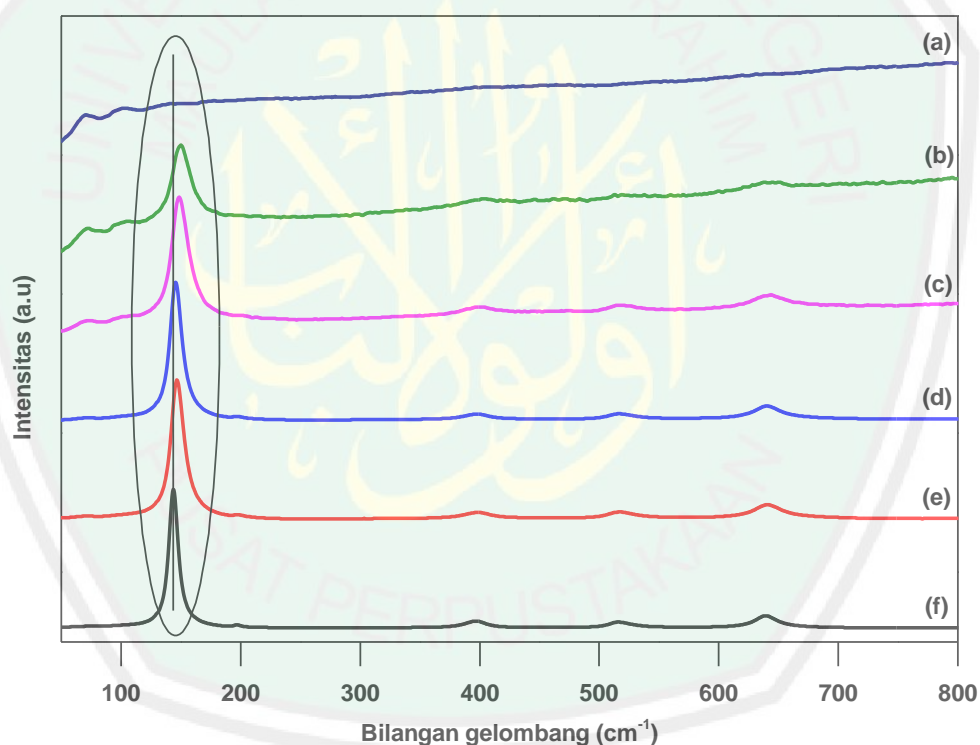
Gambar 4.8 Spektra IR : (a) zeolit mordenit (Chasanah, 2017); (b) TiO_2 /zeolit 5:95%; (c) TiO_2 /zeolit 10:90%; (d) TiO_2 /zeolit 20:80%; (e) TiO_2 /zeolit 30:70%; (f) TiO_2

Masing-masing karakter khas vibrasi molekul TiO_2 dan zeolit terdeteksi pada semua variasi komposisi $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$, terlihat bahwa puncak pada bilangan gelombang di daerah 1370 dan 667 cm^{-1} masih dapat teramati dengan jelas, ditambah dengan munculnya puncak pada bilangan gelombang di daerah 460, 690-795 dan 1070 cm^{-1} yang merupakan karakter khas puncak dari zeolit modernit. Bilangan gelombang 460 cm^{-1} adalah vibrasi tekuk O-Al-O dan O-Si-O, 690-795 cm^{-1} adalah vibrasi ulur simetrik T-O-T (690 cm^{-1} ; Si-O-Al dan 795 cm^{-1} : Si-O-Si/O-Si-O), dan 1070 cm^{-1} adalah vibrasi ulur asimetrik T-O-T (T: Si/Al).

Interaksi yang terjadi antara TiO_2 dengan zeolit dapat berupa interaksi intramolekul melalui pembentukan ikatan baru atau interaksi antarmolekul yang tidak membentuk ikatan baru. Interaksi intramolekul dilaporkan terjadi melalui pembentukan ikatan Ti-O-Si yang muncul sebagai vibrasi asimetrik pada bilangan gelombang $950-965 \text{ cm}^{-1}$ (Alwash, dkk., 2012), akan tetapi dalam penelitian ini tidak diperoleh puncak pada bilangan gelombang $950-965 \text{ cm}^{-1}$ sehingga interaksi yang terbentuk diduga merupakan interaksi antarmolekul antara TiO_2 dengan zeolit. Interaksi fisika dapat terjadi melalui gaya antar molekul seperti Van der Waals, dipol-dipol dan atau ikatan hidrogen ketika TiO_2 terdispersi ke permukaan zeolit.

Daerah bilangan gelombang 1070 cm^{-1} juga terdapat sedikit pergeseran pada spektrum IR, dimana semakin banyak TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit, spektrum IR semakin bergeser ke arah bilangan gelombang yang semakin besar. Hal ini, dapat diindikasikan bahwa pengembanan TiO_2 mempengaruhi vibrasi molekul zeolit pada bilangan gelombang 1070 cm^{-1} sehingga menyebabkan ikatan T-O-T menjadi lebih kaku.

Karakterisasi pada $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ juga dilakukan menggunakan spektroskopi Raman untuk mengetahui bahwa modus vibrasi $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$. Spektrum Raman hasil karakterisasi $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ seperti ditampilkan pada Gambar 4.9. Berdasarkan Gambar 4.9 yang menunjukkan bahwa TiO_2 berhasil diembankan pada zeolit. Hal ini dikarenakan munculnya puncak khas TiO_2 anatas pada spektra Raman $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ dengan munculnya puncak yang cukup kuat dan tinggi pada bilangan gelombang 144, 398, 516, dan 637 cm^{-1} .

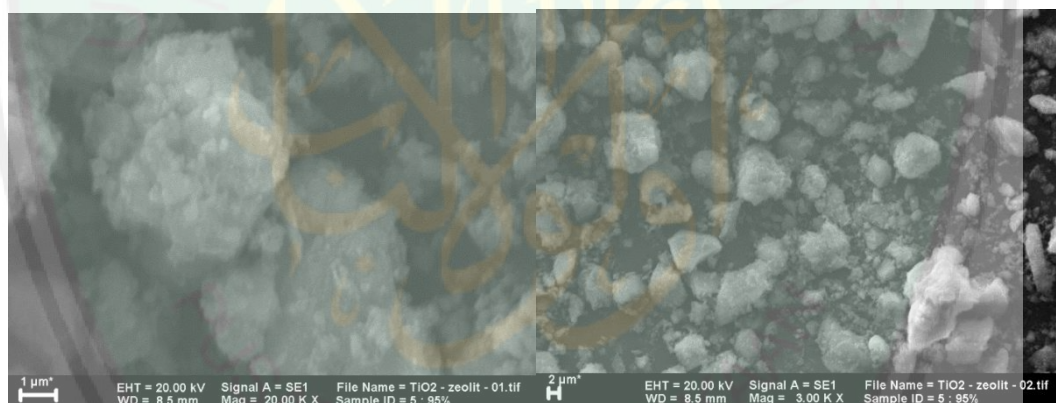


Gambar 4.9 Spektra Raman : (a) zeolit mordenit (Chasanah, 2017); (b) $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ 5:95%; (c) $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ 10:90%; (d) $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ 20:80%; (e) $\text{TiO}_2/\text{zeolit}$ 30:80%; (f) TiO_2

Interaksi TiO_2 dengan zeolit teramati dengan spektra lokal struktur zeolit yang semakin kaku, hal ini ditandai dengan pergeseran puncak ke arah bilangan gelombang yang lebih tinggi yang dikarenakan energi vibrasi semakin tinggi

seiring banyaknya jumlah komposisi TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit. Hal ini mungkin dikarenakan TiO_2 yang diimbangkan pada zeolit dapat mempengaruhi vibrasi ikatan O-Ti-O.

Karakterisasi juga dilakukan dengan SEM-EDX untuk mengamati morfologi dan jumlah komposisi dari TiO_2 /zeolit hasil sintesis. Analisa SEM dilakukan dengan perbesaran 3.000 kali dan 20.000 kali, dapat diamati bahwa secara kualitatif TiO_2 /zeolit berbentuk seperti bulatan yang tidak beraturan, dan terlihat juga bahwa TiO_2 menempel pada permukaan zeolit seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.10.



Gambar 4.10 Morfologi TiO_2 /zeolit hasil sintesis menggunakan SEM

Analisa EDX juga dilakukan untuk mengetahui jumlah komposisi TiO_2 /zeolit hasil sintesis. Komposisi TiO_2 /zeolit yang dianalisa yaitu pada perbandingan 5:95%, hal ini dikarenakan logika berpikir bahwa apabila jumlah TiO_2 pada jumlah yang sedikit dapat terdeteksi, maka dengan jumlah yang lebih banyak juga akan semakin terdeteksi. Jumlah komposisi unsur penyusun hasil sintesis yang ditampilkan pada Tabel 4.4.

Tabel 4.4 Komposisi massa atom pada TiO₂/zeolit dari data EDX

Nama Atom	Nomor Atom	Massa Atom (%)
O	8	68,55
C	6	13,74
Si	14	8,03
Al	13	1,93
Ti	22	1,06
K	19	0,43
Fe	26	0,21
Ca	20	0,17
Mg	12	0,13
Na	11	0,11

Pada Tabel 4.4 yang ditampilkan dapat diketahui bahwa komposisi hasil sintesis TiO₂/zeolit banyak sekali unsur atom yang terdeteksi. Selain unsur atom Ti, O, dan C dari hasil sintesis TiO₂, muncul juga unsur atom Si dan Al dari unsur atom penyusun zeolit, namun masih banyak ion logam lain yang terdeteksi seperti unsur atom K, Fe, Ca, Mg, dan Na. Hal ini dikarenakan zeolit yang digunakan adalah zeolit alam yang mungkin pada proses aktivasi masih terikat pada zeolit.

Al-Qur'an sebagai pedoman hidup dianggap sebagai inti sari segala ilmu pengetahuan yang berisikan petunjuk, pokok-pokok hukum, politik, ekonomi, peraturan, serta dasar hukum agama dan lain sebagainya. Salah satu kalam Allah SWT yang dapat dijadikan sebagai petunjuk adalah surat al-A'raf ayat 56 seperti berikut:

وَلَا تُفْسِدُوا فِي الْأَرْضِ بَعْدَ إِصْلَاحِهَا وَادْعُوهُ خَوْفًا وَطَمَعًا ۚ إِنَّ رَحْمَتَ اللَّهِ قَرِيبٌ مِّنَ الْمُحْسِنِينَ ٥٦

Artinya: (164). Dan janganlah kamu membuat kerusakan di muka bumi, sesudah (Allah SWT) memperbaikinya dan berdoalah kepada-Nya dengan rasa takut (tidak akan diterima) dan harapan (akan dikabulkan). Sesungguhnya rahmat Allah amat dekat kepada orang-orang yang berbuat baik.

Ayat (وَلَا تُفْسِدُوا) *wa laa tufsiduu* memiliki arti “jangan merusak” yang mana maksudnya adalah hendaknya manusia yang senantiasa berfikir untuk dapat mengoptimalkan atau memanfaatkan ciptaan Allah SWT yang ada di muka bumi ini tanpa merusaknya (Abdullah, 2003). Sebagai upaya mengamalkan ayat tersebut, dapat dilakukan melalui pengoptimalan zeolit alam dengan aktivasi dan modifikasi. Perlakuan aktivasi dan modifikasi zeolit alam tersebut tidak akan merubah struktur dari zeolit alam sebagai sumber mineral alam melimpah yang telah disediakan Allah SWT bagi manusia, melainkan sebagai upaya pengoptimalan kinerja zeolit alam agar lebih efisien dalam penggunaannya. Inilah salah satu upaya manusia dalam menata tatanan kehidupan di alam dengan menjaga keseimbangan kehidupan lingkungan hidup dan selalu merawatnya. Hal tersebut merupakan bukti bahwa ilmu pengetahuan memiliki kedudukan yang penting dalam kehidupan manusia.

BAB V

PENUTUP

5.1 Kesimpulan

Hasil sintesis TiO₂ dengan metode sol-gel mempunyai fasa anatas. Pengembangan TiO₂ pada zeolit alam teraktivasi telah dilakukan dan tidak mempengaruhi struktur dari TiO₂ yang ditunjukkan dengan tidak munculnya puncak-puncak baru pada data difraksi sinar-X dan juga ditunjukkan dari spektrum Raman TiO₂/zeolit yang menunjukkan spektrum khas dari TiO₂. Data EDX juga menunjukkan sampel hasil sintesis mengandung zeolit dan TiO₂. Data spektrum IR tidak menunjukkan adanya puncak vibrasi asimetrik Ti-O-Si pada bilangan gelombang 950-965 cm⁻¹ yang mengindikasikan bahwa interaksi yang terjadi antara TiO₂ dan zeolit alam adalah interaksi antarmolekul.

5.2 Saran

Perlu adanya penelitian lanjutan mengenai aplikasi penggunaan material fotokatalis yang dihasilkan agar lebih mengetahui kinerja fotokatalitik terbaik pada material semikonduktor TiO₂, kemudian peningkatan kinerja fotokatalitik TiO₂ yang diimbangkan pada zeolit alam dengan melakukan uji aktivitas fotokatalis untuk mendegradasi limbah. Selain itu, perlu dilakukan karakterisasi menggunakan instrumen yang dapat menganalisa luas permukaan TiO₂/zeolit hasil sintesis.

DAFTAR PUSTAKA

- Abdullah B. M. B. A., 2003. Tafsir Ibnu Katsir Jilid 4. *Buku Tafsir*. Bogor: Pustaka Imam Asy-Syafi'i.
- Aliah, H., Setiawan, A., dan Abdullah, M. 2015. Pengaruh Jumlah Lapisan Bulir Polimer Polipropilena Berfotokatalis Semikonduktor TiO₂ Terhadap Fotodegradasi Metilen Blue. *Prosiding*. FMIPA Universitas Lampung :479-483.
- Alwash, A.H., Abdullah, A.H., dan Ismail, N. 2012. Zeolite Y Encapsuled With Fe-Tio₂ for Ultrasound-Assisted Degradation Of Amaranth Dye In Water. *Journal of Hazardous Materials*, (233-234): 184-193.
- Arutanti Osi. 2009. Penjernihan Air Dari Pencemar Organik dengan Proses Fotokatalis Pada Permukaan Titanium Dioksida (TiO₂). *Journal Nanosains Nanoteknologi.*, Edisi Khusus: 2-4.
- Bere, F. 2013. Pengaruh Ion Logam Cu (II) Terhadap Efektivitas Fotodegradasi Zat Warna Metien Biru Terkatalis TiO₂. *Skripsi*. Yogyakarta: Universtas Islam Negeri Sunan Kali Jaga.
- Botianovi, A., 2012. Analisis Permukaan Zeolit Alam Malang yang Mengalami Modifikasi Pori dengan Uji SEM-EDS. *Skripsi* UIN Maulana Malik Ibrahim Malang.
- Brinker, C. Jeffrey dan George, W. Scherer. 1990. *Sol-Gel Science: The Physics and Chemistry of Processing*. New York: Academy Press, Inc.
- Byrappa K. Dan Kumar B.V.S. 2007. Characterization of Zeolite by Infrared Spectroscopy. *Asian Journal of Chemistry*, 19(6): 4933-4935.
- Chen, R. F., C. X. Zhang, J. Deng, and G. Q. Song. 2009. Preparation and Photocatalytic Activity of Cu²⁺ Doped TiO₂/SiO₂. *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 16: 220–225.
- Chen, X dan Mao S.S. 2007. Titanium Dioxide Nanomaterials: Synthesis, Properties, Modifications, And Applications. *Chemical Reviews*, 10(7): 2891-2959
- Chetam. A, 1992. *Solid State Chemistry*. London: Oxford University Press.
- Choi, J., Park, H., dan Hofmann, M.R. 2009. Combinatorial Doping of TiO₂ with Platinum (Pt), Chromium (Cr), Vanadium (V) and Nickel (Ni) to Achieve Enhanced Photocatalytic Activity with Visible Light Irradation. *Journal Materials*, 25: 149-158.
- Chong, M. N., dan Jin, B.. 2012. Sol-Gel Synthesis of Inorganic Mesostructured Composite Photocatalyst for Water Purification: An Insight Into The Synthesis Fundamentals, Reaction, and Binding Mechanisms. *Synthesis*

and Reactivity in Inorganic, *Metal-Organic, and Nano-Metal Chemistry*, (42): 1553-3174

- Chong, M. N., Tneu, Z.Y., Poh, P.E., Jin, B., dan Aryal, R. 2014. Synthesis, Characterization and Application of TiO₂-Zeolite Nanocomposite for The Advanced Treatment of Industrial Dye Wastewater. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 000: 1-9.
- Damayanti, C. A., Sri W., dan Danar P., 2014. Pengaruh Konsentrasi TiO₂ dalam Zeolit terhadap Degradasi Methylene Blue secara Fotokatalitik. *Student Journal*, 1(1): 8-14.
- Dambournet, D., Belharouak, I., Ma, J., dan Amine, K. 2010. Template-assisted Synthesis of High Packing Density SrLi₂Ti₆O₁₄ for Use as Anode in 2.7-V Lithium-ion Battery. *Journal of Power Sources*, 196: 2871-2874.
- Diebold, A., 2003. *The Surface Science of Titanium Oxide*. Australia: Tulane University Press.
- Dini, E.W.P, dan Wardhani, S. 2014. Degradasi Metilen Biru Menggunakan Fotokatalis ZnO-Zeolit. *Skripsi*. Malang: FMIPA Universitas Brawijaya.
- Escobar, Elim. A, dkk., 2010. Photocatalytic Reduction of Benzophenone on TiO₂: Effect of Preparation Method and Reaction Conditions. *Journal Mexico Chemistry*, 54(3): 133-138.
- Fatimah, I. dan Wijaya K. 2005. Sintesis TiO₂/Zeolit sebagai Fotokatalis pada Pengolahan Limbah Cair Industri Tapioka secara Adsorpsi-Fotodegradasi. *Jurnal Tektain*, 10(4): 0853-8697.
- Fatimah, I. 2009. Dispersi TiO₂ ke dalam SiO₂-Montmorillonit: Efek Jenis Prekursor. *Journal Penelitian Saintek*, 14: 41-58.
- Fernandez, B.R. 2011. *Sintesis Nanopartikel*. Padang: Universitas Andalas Padang Press.
- Fujishima, X. Zhang dan D.A. Tryk. 2008. TiO₂ Photocatalysis and Related Surface Phenomena. *Surface Science Report*, 63: 515-582.
- Guesh, K, C.M. Alvarez, Y. Chebude dan I. Diaz. 2016. Enhanced Photocatalytic Activity of Supported TiO₂ by Selective Surface Modification of Zeolite Y. *Applied Surface Science*, 378: 473-478.
- Hlavay J., Vassanyi I. dan Incezedly J. 1985. Quantitative Determination of The Mordenite Content of Natural Zeolite Rocks by Infrared Spectroscopy. *Spectrochimica*, 4(1A): 1457-1458.
- Hartini, E. 2011. Modifikasi Zeolit Alam Dengan ZnO untuk Degradasi Fotokatalisis Zat Warna. *Tesis*. Depok: Universitas Indonesia.

- Hasibuan, R. A., 2012. Modifikasi Zeolit Alam dengan TiO_2 untuk Mereduksi Emisi Gas Buang Kendaraan Bermotor. *Skripsi*. Depok: Universitas Indonesia.
- Henderson, Michael A. 2011. A Surface Science Perspective on TiO_2 Photocatalysis. *Surface Science Report*, 66: 185-297.
- Hutomo, D.W. 2012. Sintesis Dan Karakteristik Fotokatalis Mn^{2+} -ZnO Berbasis Zeolit Alam. *Skripsi*. Depok: Universitas Indonesia
- Kaneko, M, dan Okura, I. 2002. *Photocatalysis Science and Technology*. Japan: Springer.
- Kim, D.S., Han, S.J, dan Kwak, S.Y. 2007. Synthesis and Photocatalytic activity of Mesoporous TiO_2 with The Surface Area, Crystallite Size, and Pore Size. *Journal of Colloid and Interface Science*, 316: 85-91.
- Knight, C.I, Williamson, M.A, dan Bodnar, R.J, 1989. *Characterization of Natural Zeolites with The Laser Raman Microprobe: Raman Spectroscopy of Zeolites*, San Fransisco: San Fransisco Press.
- Kuncorojati, D., 2010. Sintesis Komposit TiO_2 -Zeolit Alam Lampung-Karbon Aktif untuk Disinfeksi E.coli Oksida Fenol dan Reduksi Cr(VI). *Skripsi*. Depok: Universitas Indonesia.
- Leaustic, A., Babonneau, F., dan Livage, J., 1988. Structural Investigation of The Hydrolysis-Condensation Process of Titanium Alkoxide $\text{Ti}(\text{OR})_4$ ($\text{OR}=\text{OPr}^i, \text{OEt}$) Modified by Acetylacetone-2 from The Modified Precursor to The Colloids. *Journal Chemistry and Materials*, 1: 248-252.
- Lestari, D. Y., 2010. Kajian Modifikasi dan Karakterisasi Zeolit Alam dari Berbagai Negara. *Prosiding Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan Kimia 2010 Jurdik Kimia UNY 54th*. Yogyakarta: Universitas Negeri Yogyakarta: 1956-2010.
- Lisenbiger, A.L, dkk., 1995. Phtocatalysis on TiO_2 Surface: Principles, Mechanisms, and Selected Results. *Chemical Reviews*, 95: 735-758.
- Liu, S, M. Lim dan R. Amal. 2014. TiO_2 -coated Natural Zeolite: Rapid Humic Acid Adsorption and Effective Photocatalytic Regeneration. *Chemical Engineering Science*, 105: 46-52.M.
- Marlupi, I. 2003. Desinfeksi Eschericia coli Melalui Fotokatalis Titanium Dioksida (TiO_2) Bubuk Fase Rutil. *Skripsi*. Bandung: Jurusan Fisika FMIPA ITB.
- Mozgawa, 2001. The Relation between Structure and Vibrational Spectra of Natural Zeolites. *Journal of Molecular Structure*, 596: 129-137.

- Nandiyanto, A. B. D, 2013. Synthesis of Spherical Macroporous WO_3 Particles and Their High Photocatalytic Performance. *Chemical Engineering Science*, 101: 523-532.
- Nguyen, The-Vinh., Choi, Dae-Jin., dan Yang, O-Bong., 2004. Effect of Chelating Agents on The Properties of TiO_2 - SiO_2 Mixed Oxide for Photocatalytic Decomposition. *Journal Chemical Intermedia*, 31(4-6): 483-491.
- Ningsih, Tri Silvia, 2012. Sintesis Dan Karakteristik Fotokatalis Ni^{2+} - ZnO Berbasis Zeolit Alam. *Skripsi*. Depok: Universitas Indonesia.
- Noorjahan. M, V.D. Kumari, M. Subrahmanyam dan P. Boule. 2004. A Novel and Efficient Photocatalyst: TiO_2 -HZSM-5 Combine Thin Film. *Applied Catalysis : Environment*. 47: 209-213.
- Nugroho, A, I. 2011. Deposisi Lapisan Tipis dan Pembuatan Sistem Pengolahan Air Limbah Organic Menggunakan Material Fotokatalis Titania (TiO_2). *Skripsi*. Semarang: Undip Semarang.
- Ohsaka, T. 1978. Raman Spectrum of Anatase TiO_2 . *Journal of Raman Spectroscopy*, 7(6): 321-324.
- Palupi, E. 2006. Degradasi Methylene Blue Dengan Metode Fotokatalisis Dan Fotoelektrokatalisis Menggunakan Film TiO_2 . *Skripsi*. Bogor: Institut Pertanian Bogor.
- Pirajan, J.C.M., Vanessa S., Garcia C. dan Liliana G. 2010. Synthesis of HMOR and HZSM-5 and Their Behaviour in the Catalytic Conversion of Methanol to Propylene (MTP). *Journal Thermodyn Catalyst*, 1: 101.
- Ramasamy, P., Lin, D.H., Kim, J., dan Kim, J., 2013. A General Approach for Synthesis of Functional Metal Oxide Nanotubes and their Application in Dye-sensitized Solar Cells. *The Royal Society of Chemistry*, 314-701.
- Ratiu. C. dkk. 2008. Synthesis and Characterization of Zeolite Materials Functionalized with Undoped and N-Doped TiO_2 Nanocrystal. *Moldavian Journal of the Physical Science*, 8: 70-77.
- Riyani, K., Setyaningtyas, T., dan Dwiasih, W. 2012. Pengolahan Limbah Cair Batik Menggunakan Fotokatalisi TiO_2 Dopan-N dengan Bantuan Sinar Matahari. *Valensi*, 2(5): 581-587.
- Saravanan, P., Pakshirajan, K.P. dan Saha, J. 2009. Degradation of Phenol by TiO_2 -based Heterogeneous Photocatalysts in Presence of Sunlight. *Journal of Hydro-environment Research*, 3: 45-50.
- Sarno, G. 2016. TiO_2 /Zeolite Composite on Ceramic Tiles: Influence of the Amount of Photocatalyst on Adsorption and Photocatalytic Properties. *Chemical Engineering Science*, 52: 841-846.

- Schiavello, 1997. *Heterogeneous Photocatalysis*. Pallermo: Pallermo University Press.
- Shankar, M.V, Ananadan S., Venkatachalam N., Arabindo B., dan Murugesan V. 2006. Fine Route of an Efficient Removal of 2,4-dichlorophenolxyacetic Acid (2,4-D) by Zeolite-Supported TiO₂. *Chemosphere*, 63: 1014-1021.
- Srihapsari, D. 2006. Penggunaan Zeolit Alam yang Telah Diaktivasi dengan Larutah HCl untuk Menyerap Logam-Logam Penyebab Kesadahan Air. *Skripsi*. Semarang: FMIPA UNNES.
- Su, C., Hong. B. Y., Tseng C. M. 2004. Sol Gel Preparation and Photocatalysis of Titanium Dioxide. *Journal of Catalysis Today*, 06: 132.
- Sutarti, M., dan Rachmawati, M., 1994. *Zeolit: Tinjauan Literatur*. Jakarta: Pusat Dokumentasi dan Informasi Ilmiah LIPI.
- Svehla. G. 1990. *Analisis Anorganik Kualitatif Makro dan Semimikro Edisi Ke 5 Bagian I*. Jakarta: PT. Kalman Media Pustaka.
- Tian, J. 2009. Photocatalyst of TiO₂/ZnO Nanocomposite Film: Preparation, Characterization, and Photodegradation Activity of Methyl Orange. *Surface and Coating Technology*, 204: 205-214.
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E., dan Sudiono, S. 2005. Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam. *Jurnal Teknoin*, 10: 269 -282.
- Utubira, Y. 2006. Preparation and Characterization of TiO₂-Zeolite and its Application to Degrade Textile Wastewater by Photocatalytic Method. *Indo Journal Chemistry*, 6(3): 231-237.
- Wang, S. dan Yuelian P. 2010. Natural Zeolites as Effective Adsorbents in Water and Wastewater Treatment. *Review Chemical Engineering Journal*, 156: 11-24.
- Wang, S.F, L. Sun, J., Li, C.L., Li, H.B., Chen, C.J., dan Lin, S. 2009 . Energy Mater. *Sol Cells*, 93: 1875–1880.
- Widodo, S. 2010. Teknologi Sol-Gel Pada Pembuatan Nano Kristalin Metal Oksida Untuk Aplikasi Sensor Gas. *Seminar Rekayasa dan Proses*, 000: 1411-4216.
- Wijaya, K., Eko S., Is F., Iqmal T., dan Rudatiningsih. 2006. Fotodegradasi Zat Warna Alizarin S Menggunakan TiO₂-Zeolit dan Sinar UV. *Indonesian Journal Chemistry*, 6: 32-37.

LAMPIRAN

Lampiran 1. Perhitungan

L.1 Perhitungan Kadar TiO₂/zeolit

Diketahui :

Mr TIP : 284,22 gr/mol

Mr TiO₂ : 79,86 gr/mol

Ar Ti : 47,9 gr/mol

ρ : 0,967 gr/cm³

Target Sintesis : 1,5 gr

L.1.1 Menghitung % massa Ti 100%

$$\begin{aligned} \text{massa TIP} &= \frac{\text{Ar Ti}}{\text{Mr TiO}_2} \times \frac{\text{Mr TIP}}{\text{Ar Ti}} \times 1,5 \text{ gr} \\ &= \frac{47,9}{79,86} \times \frac{284,22}{47,9} \times 1,5 \text{ gr} \\ &= 5,533 \text{ gram} \end{aligned}$$

$$\text{Volume TIP} = \frac{m}{\rho} = \frac{5,533 \text{ gram}}{0,967 \text{ gram/cm}^3} = 5,72 \text{ mL}$$

L.1.2 Massa atom Ti dalam TIP

$$\text{Ti (gr)} = \text{massa TIP (gr)} \times \frac{\text{Ar (Ti)}}{\text{Mr TIP}}$$

$$\text{Ti (gr)} = 5,533 \text{ gr} \times \frac{47,9 \text{ g/mol}}{284,22 \text{ g/mol}}$$

$$\text{Ti (gr)} = 0,93 \text{ gr}$$

L.1.3 Menghitung % massa Zeolit 95%

$$95 \% = 100 \% \times \frac{\text{zeolit}}{\text{zeolit} + (\text{TiO}_2)}$$

$$95 \% = 100 \% \times \frac{\text{zeolit}}{\text{zeolit} + (1,5 \text{ gr})}$$

$$100 \text{ zeolit} = 95 \text{ zeolit} + 142,5 \text{ gram}$$

$$(100 - 95) \text{ zeolit} = 142,5 \text{ gram}$$

$$5 \text{ zeolit} = 142,5 \text{ gram}$$

$$\begin{aligned}\text{Zeolit (gram)} &= \frac{142,5 \text{ gram}}{5} \\ &= 28,5 \text{ gram}\end{aligned}$$

Perhitungan massa zeolit pada perbandingan komposisi TiO₂/zeolit (%) 90:10, 80:20, dan 70:30 dihitung dengan persamaan yang sama seperti pada persamaan L.1.3 dan dirangkum pada Tabel L.1.

Tabel L.1 Perbandingan TiO₂/zeolit

Perbandingan TiO ₂ : zeolit	Massa (gr)	
	TiO ₂	Zeolit
0% : 100%	-	1,5
5% : 95%		28,5
10% : 90%		13,5
20% : 80%	1,5	6
30% : 70%		3,5
100% : 0%		-

L.2 Rasio perbandingan TIP : CH₃COOH

$$\begin{aligned}\text{Volume TIP} &= 5,72 \text{ ml} \\ \rho &= 0,96 \text{ gr/cm}^3 \\ \text{massa} &= \rho \times \text{volume} \\ &= 0,96 \text{ gr/cm}^3 \times 5,72 \text{ ml} \\ &= 5,49 \text{ gram} \\ \text{Mol} &= \text{massa}/\text{mr} \\ &= 5,49 \text{ gram}/284,22 \text{ gr/mol} \\ &= 0,019 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Mol CH}_3\text{COOH} &= \text{mol TIP} \times 5,20 \\ &= 0,019 \text{ mol} \times 5,20 \\ &= 0,1 \text{ mol}\end{aligned}$$

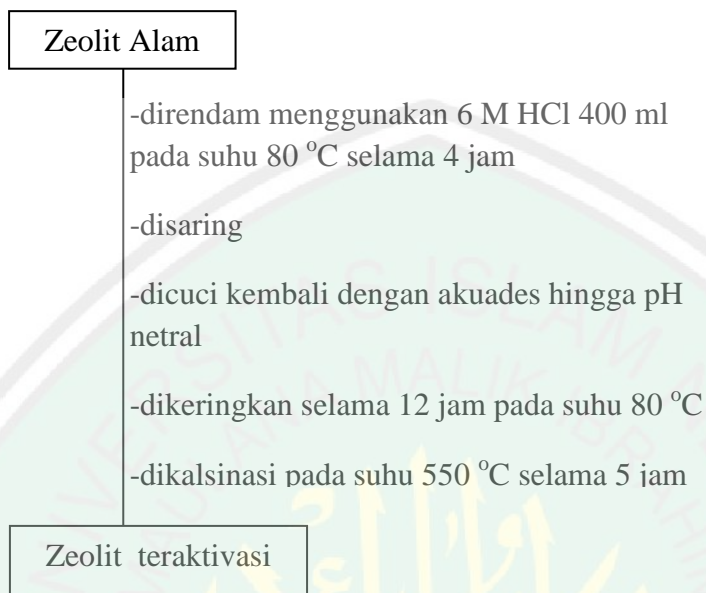
$$\text{Massa} = \text{mol}/\text{mr}$$

$$\begin{aligned} &= 0,1 \text{ mol} \times 60 \text{ gr/mol} \\ &= 6 \text{ gram} \\ \text{Volume CH}_3\text{COOH} &= \text{massa}/\rho \\ &= 6 \text{ gram}/1,03 \text{ gr/cm}^3 \\ &= 5,82 \text{ ml} \end{aligned}$$

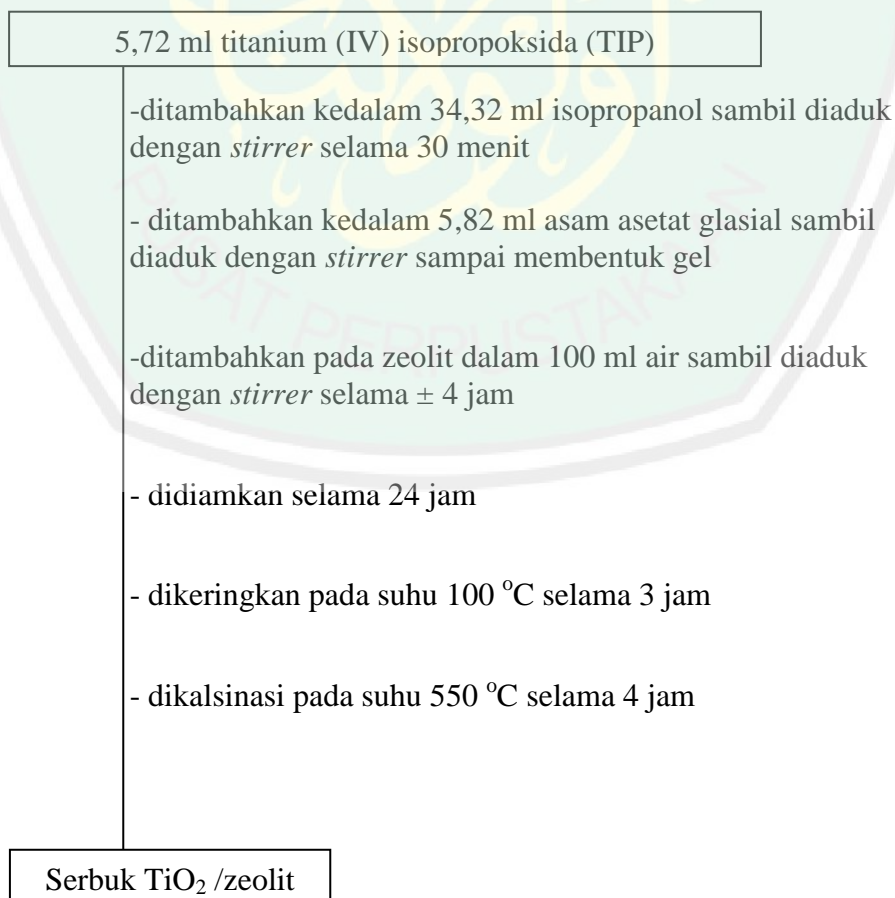


Lampiran 2. Diagram alir

1. Aktivasi Zeolit Alam Malang



2. Sintesis Material TiO₂/zeolit dengan metode sol-gel



3. Karakterisasi Fotokatalis

