

# Penentuan Kondisi Optimum Proses Degradasi Methanil Yellow Pada Reaktor Fotokatalitik TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>

Irene Praticia Irwan<sup>1</sup>, Hardeli<sup>2</sup>, Hary Sanjaya<sup>3</sup>

Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Negeri Padang, Padang, Sumatera Barat

<sup>1</sup>irene\_praticia@yahoo.co.id, <sup>2</sup>hardelil1@yahoo.com, <sup>3</sup>hari.s@fmipa.unp.ac.id

**Abstracts** — Photocatalytic reactor is a device used to degrade organic pollutants. In this study, researchers used TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> photocatalytic reactor to degrade dye yellow methanil 20 ppm. This study aims to determine the number of columns used glasses and long irradiation optimum TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> photocatalytic reactor to degrade methanil yellow dye. In this study, the used TiO<sub>2</sub> Degussa P-25 with the addition of SiO<sub>2</sub> which aims to reduce pore size and extend catalyst surface thereby optimizing the photocatalytic activity of TiO<sub>2</sub> films. Variations in the amount of glass columns used were 3, 5, 7, 9, and 11 columns. While the variation of irradiation time is longer irradiation are 1, 2, 3, 4, 5, 6, hours. After the process of degradation, absorbance was measured using a spectrophotometer methanil yellow UV-Vis and degradation products formed at the optimum conditions were identified using GC-MS. Characterization of TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> crystals using XRD. The result showed the optimum conditions methanil yellow degradation at a concentration of 20 ppm in the photocatalytic reactor that is, the number of columns as much as 9 cups of fruit and a long column of irradiation for 4 hours. In this condition, the percentage obtained by degradation of 12.63% with a flow rate of 95 ml / s and as much as 5x the amount of coating coating.

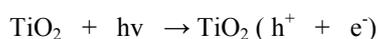
**Key Words** — TiO<sub>2</sub>, photocatalytic, SiO<sub>2</sub>, degradation, *methanil yellow*, glass column, irradiation time.

## I. PENDAHULUAN

*Methanil yellow* adalah zat warna sintetik berbentuk serbuk berwarna kuning kecoklatan, larut dalam air, agak larut dalam aseton. *Methanil yellow* merupakan senyawa kimia azo aromatik amin yang dapat menimbulkan tumor dalam berbagai jaringan hati, kandung kemih, saluran pencernaan atau jaringan kulit. *Methanil yellow* dibuat dari *asam metanilat* dan *difenilamin*, Kedua bahan ini bersifat toksik. *Methanil yellow* merupakan pewarna tekstil yang sering disalahgunakan sebagai pewarna makanan. Pewarna tersebut bersifat sangat stabil. *Methanil yellow* biasa digunakan untuk mewarnai wool, nilon, kulit, kertas, cat, aluminium, detergen, kayu, bulu, dan kosmetik [7]

Jika permukaan bahan semikonduktor seperti TiO<sub>2</sub> dikenai sinar ultra violet (UV) yang mempunyai energi lebih besar dari bandgap semikonduktor tersebut, maka akan terbentuk pasangan elektron (e<sup>-</sup>) di pita konduksi dan hole (h<sup>+</sup>) di pita valensi. Elektron yang tereksitasi dan sampai ke permukaan katalis dapat mereduksi ion-ion logam berat, sedangkan hole yang terbentuk dapat menghasilkan radikal •OH yang dapat mendegradasi (mengoksidasi) senyawa organik[4].

Sebagai semikonduktor, TiO<sub>2</sub> mempunyai celah pita (*band gap*) sebesar 3,2 eV yang bila disinari sinar UV berenergi > 3,2 eV atau panjang gelombang < 388 nm akan menghasilkan pasangan elektron (e<sup>-</sup>) dan hole (h<sup>+</sup>), seperti pada persamaan berikut [5].



Radikal hidroksil yang terbentuk dari elektron dan hole dalam air bereaksi dengan zat warna *methanil yellow* dan

mendegradasinya menjadi CO<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O atau senyawa lain yang tidak beracun.

Penggunaan semikonduktor TiO<sub>2</sub> murni masih kurang efisien karena TiO<sub>2</sub> murni dapat menyebabkan rekombinasi elektron dan *hole* sehingga perlu ditambahkan dopan. Dopan yang biasa digunakan adalah bahan semikonduktor salah satu diantaranya adalah SiO<sub>2</sub>. Fotokatalis TiO<sub>2</sub> yang dimodifikasi dengan penambahan sol SiO<sub>2</sub> bertujuan untuk memperkecil ukuran pori, dan memperluas permukaan katalis sehingga mengoptimalkan aktifitas film fotokatalis TiO<sub>2</sub>. Kombinasi antara sol TiO<sub>2</sub> dengan SiO<sub>2</sub> menyebabkan keadaan hidrofilik permukaan dapat bertahan lebih lama [3].

Untuk mendukung proses fotokatalisis maka dibuat sebuah alat yang disebut reaktor fotokatalitik. Proses fotokatalitik dapat dilakukan dengan mengembangkan sebuah reaktor fotokatalitik mengalir dengan semikonduktor TiO<sub>2</sub> yang dilapiskan pada bagian dalam kolom gelas, yang diharapkan dapat mengatasi keterbatasan kemampuan penetrasi foton pada permukaan katalis dan keterbatasan transfer massa [2]. Satu unit rangkaian reaktor fotokatalik TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> terdiri dari 11 buah kolom gelas (diameter ± 2 cm dan panjang ± 60 cm) yang disusun seri. Pada bagian dalam dinding setiap kolom gelas tersebut diimobilisasikan lapisan tipis TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> [5].

Dalam proses degradasi *methanil yellow* pada reaktor fotokatalitik TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> dipengaruhi oleh konsentrasi awal, volume awal, jumlah kolom gelas, laju alir, jumlah pelapisan TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>, dan lama penyinaran. Pada penelitian yang dilakukan oleh Ade, (2010) degradasi senyawa organik seperti fenol dengan metode fotokatalisis menggunakan reaktor fotokatalitik TiO<sub>2</sub> diperoleh kondisi optimum jumlah kolom gelas 9 kolom. Semakin banyak kolom gelas, maka proses

degradasi semakin besar, tetapi apabila jumlah kolom gelas sedikit maka waktu kontak katalis dengan *methanil yellow* juga semakin berkurang sehingga yang terdegradasi sedikit dan waktu yang dibutuhkan untuk proses mendegradasi semakin lama. Dimana semakin lama penyinaran bagian sisi katalis  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  yang kontak dengan sampel semakin lama, radikal hidroksil yang dihasilkan semakin banyak sehingga proses pendegradasian semakin optimal.

## II. METODE PENELITIAN

### A. Alat dan Bahan

Alat: Reaktor yang dirangkai dari material besi, sebelas kolom gelas, reservoir berkapasitas 10 liter, pompa air, selang karet, *magnetic stirrer*, *stirrer plate* yang dilengkapi *hote plate*, oven, peralatan gelas, neraca analitik, Spektrofotometer UV-Vis, GC-MS QP 2010 Plus Shimadzu, XRD.

Bahan: zat warna *methanil yellow*,  $\text{TiO}_2$  Degussa P-25, metanol p.a,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  p.a,  $\text{K}_2\text{CrO}_4$ , TEOS, Etanol,  $\text{HNO}_3$  dan Aquades.

### B. Prosedur Penelitian

#### 1) Imobilisasi $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$

##### a. Pensterilan kolom gelas

Kolom gelas yang berukuran 60 cm dan diameter 2 cm dicuci dengan detergen dan dibersihkan dengan campuran 1 mL  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  dengan 10 mL  $\text{H}_2\text{SO}_4$  p.a kemudian dibilas dengan aquades. Setelah itu, kolom gelas direndam dalam larutan metanol selama 1 hari. Kolom gelas dicuci lagi dengan aquades dan dikeringkan dalam oven

##### b. Preparasi sol $\text{SiO}_2$

Dibuat larutan  $\text{SiO}_2$  dengan cara 2,3 ml TEOS dicampur dalam 18 ml etanol, 0,1 ml  $\text{HNO}_3$  p.a, dan air 0,3 ml, lalu direfluks selama 3 jam pada suhu  $64-68^\circ\text{C}$  dan didinginkan agar terbentuk 20 ml sol  $\text{SiO}_2$ .

##### c. Preparasi sol $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$

Dibuat sol  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  dengan cara 0,1 gram  $\text{TiO}_2$  Degussa P-25 dilarutkan dalam metanol p.a sebanyak 100 mL lalu distirer selama 8 jam pada suhu  $64^\circ\text{C}$  agar terbentuk sol yang homogen. Selanjutnya ditambahkan  $\text{SiO}_2$  sebanyak 30 : 70 berat  $\text{TiO}_2$  dan distirer kembali selama 2 jam dengan pemanasan pada suhu  $64^\circ\text{C}$ .

##### d. Imobilisasi katalis $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$

Sebelum diimobilisasi dengan katalis  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ , kolom gelas ditimbang terlebih dahulu untuk penentuan berat awal. Sol  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  yang telah dipreparasi kemudian diimobilisasikan dengan cara sol diisi ke dalam kolom gelas sampai penuh, ditinggal selama 5 menit dan dikeringkan pada suhu kamar selama 20 menit. Kolom gelas yang telah dilapisi dipanaskan dalam oven pada suhu  $150^\circ\text{C}$  selama 1,5 jam. Setelah dingin kemudian ditimbang. Pelapisan diulang sampai 5x pelapisan sehingga didapatkan lapisan tipis  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  yang

merata. Berat lapisan  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  dalam kolom gelas ditentukan secara gravimetrik.

#### 2) Pembuatan Reaktor Fotokatalitik

Reaktor dibuat dengan cara kolom gelas yang telah dilapisi  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  dengan jumlah pelapisan optimum yaitu 5x pelapisan, berukuran  $\pm 60$  cm dan diameter 2 cm disusun secara seri dan disambung satu sama lainnya dengan menggunakan selang karet transparan. Susunan kolom gelas ini dihubungkan dengan reservoir berkapasitas 10 L yang dilengkapi pompa sirkulasi. Susunan kolom gelas ini diletakkan di luar ruangan agar terkena cahaya matahari. Reaktor fotokatalitik ini digunakan untuk mendegradasi *methanil yellow*.

#### 3) Preparasi Larutan Standar *Methanil yellow*

Preparasi larutan standar *methanil yellow* dilakukan dengan cara 0,005 gram kristal *methanil yellow* dilarutkan dengan sedikit metanol sampai benar-benar larut. Larutan ini diencerkan dengan aquades dalam labu ukur 100 mL sampai tanda batas sehingga konsentrasinya menjadi 50 mg/L. Larutan ini disebut larutan induk. Larutan induk dipipet sebanyak 8, 9, 10, 11, dan 12 mL, masing-masingnya dimasukkan ke dalam labu ukur 25 mL dan diencerkan sampai tanda batas, sehingga konsentrasi masing-masingnya menjadi 16, 18, 20, 22, dan 24 mg/L

#### 4) Preparasi Larutan Uji *Methanil yellow*

Pertama dibuat larutan induk *methanil yellow* 1000 ppm dengan cara ditimbang 1 gram *methanil yellow* dan dilarutkan dalam aquades lalu volume dicukupkan hingga 1000 mL. Larutan induk dipipet 200 mL untuk diencerkan dengan aquades hingga 10 L dan diperoleh larutan standar 20 ppm.

#### 5) Proses Degradasi *Methanil yellow* Pada Reaktor Fotokatalitik $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$

Proses degradasi *methanil yellow* dilakukan dengan cara sebelas kolom gelas yang telah dilapisi  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  disusun secara seri. Kesebelas kolom gelas ini disambung dengan selang karet dan dihubungkan secara sirkular ke pompa air serta reservoir yang telah berisi larutan *methanil yellow* konsentrasi 20 ppm sebanyak 10 L. Larutan uji dialirkan dari reservoir menggunakan pompa sirkulasi melewati kesebelas kolom gelas yang sedang dikenai radiasi UV yang berasal dari cahaya matahari. Larutan uji yang keluar ditampung kembali ke dalam reservoir.

Reaktor dilapisi dengan aluminium foil untuk mengoptimalkan kontak antara sinar UV dengan fotokatalis. Jumlah kolom gelas diatur sesuai variasinya yaitu, 3, 5, 7, 9, dan 11 kolom. Proses sirkulasi ini dilakukan secara kontinyu sesuai variasi lama penyinaran. Setiap 1, 2, 3, 4, 5 dan 6 jam sebanyak 10 mL larutan diambil untuk pengukuran dengan spektrofotometer UV-Vis dan identifikasi dengan GC-MS.

#### 6) Karakterisasi hasil immobilisasi $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ dengan XRD

Karakterisasi dengan XRD bertujuan untuk mengetahui struktur kristal dari serbuk katalis  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  dengan mengetahui *peak-peak* sampel setelah dibandingkan dengan *peak-peak* standar. Karakterisasi dilakukan di UIN Syarif Hidayatullah Jakarta dengan menggunakan alat Philips PW 1710 yang dilengkapi dengan *channel control* PW 1390. Analisis dilakukan dengan menggunakan X-Ray Cu  $K\alpha$ , tegangan 40 kV, arus 30 mA dan jangkauan sudut difraksi  $2\theta = 20^\circ - 100^\circ$  dengan kecepatan pengamatan  $2,4^\circ$  / menit.

Katalis serbuk dibuat dengan metoda sol-gel kemudian dikeringkan hingga menjadi serbuk. Campuran dipanaskan di atas pemanas pada suhu  $75-80^\circ\text{C}$  sambil diaduk dengan magnetik stirer hingga mulai membentuk pasta. Pasta lalu dikeringkan pada oven hingga kering selama 2 jam pada suhu  $120^\circ\text{C}$ . Setelah kering padatan digerus hingga menjadi serbuk lalu dimasukkan ke dalam furnace dan dikalsinasi pada suhu  $450^\circ$  secara bertahap.

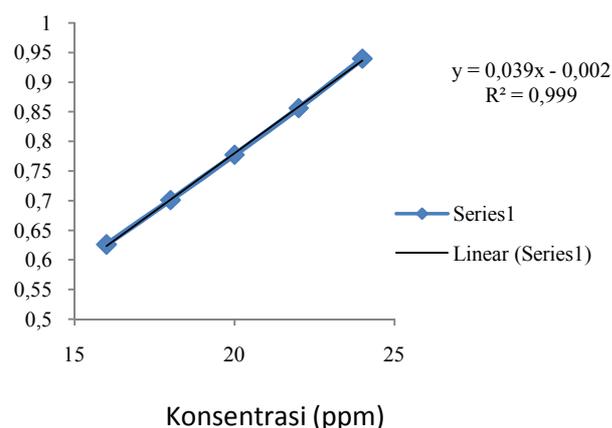
#### 7) Identifikasi dengan GC-MS

Identifikasi terhadap larutan *methanil yellow* menggunakan alat GC-MS QP 2010 Plus Shimadzu. Identifikasi terhadap larutan *methanil yellow* yang telah didegradasi dengan reaktor fotokatalitik pada kondisi optimum. Kolom yang digunakan adalah kolom kapiler dengan fasa diamnya terdiri dari 5% fenil dan 95% dimetil-polisiloksan yang bersifat non polar. Kromatografi gas diatur dengan suhu injektor  $250^\circ\text{C}$  dan suhu detektor ionisasi nyala  $280^\circ\text{C}$ . Suhu kolom mula-mula diatur  $40^\circ\text{C}$  (selama 10 menit) dinaikkan  $10^\circ\text{C}/\text{menit}$  sampai  $280^\circ\text{C}$  selanjutnya ditahan selama 20 menit. Kondisi spektrometri massa dengan metode EI (Electron Impact Ionization) diatur dengan suhu  $250^\circ\text{C}$ , suhu transfer *line*  $275^\circ\text{C}$ , vakum 30-50 torr, energi elektron 70 eV dan arus emisi 250 A.

### III. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### A. Pengukuran Absorbansi *Methanil yellow* dengan Spektrofotometer UV-Vis

Pengukuran absorbansi *methanil yellow* dilakukan dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Pengukuran *methanil yellow* menunjukkan serapan pada daerah *visible* pada panjang gelombang antara 350 nm – 700 nm. Dari data pengukuran absorbansi tersebut, dibuat kurva standar *methanil yellow* seperti terlihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Kurva Standar *Methanil yellow*

Grafik pada Gambar 1 memperlihatkan kecenderungan meningkatnya absorbansi seiring dengan semakin besarnya konsentrasi *methanil yellow*. Dari kurva standar ini diperoleh persamaan regresi linier yaitu  $Y = 0,039X - 0,002$  dengan koefisien korelasi  $R^2 = 0,999$ . Persamaan ini digunakan untuk menentukan konsentrasi awal dan konsentrasi sisa *methanil yellow* setelah proses degradasi. Berdasarkan hukum Lambert Beer, absorbansi yang bagus berada antara 0,2 – 0,8 ppm. Berdasarkan data pengukuran, larutan standar dengan konsentrasi 20 ppm menghasilkan absorbansi mendekati 0,8 dengan nilai konsentrasi 0,77 yang digunakan sebagai konsentrasi awal *methanil yellow*. Akan tetapi, setelah dilakukan perhitungan diperoleh konsentrasi awal *methanil yellow* yaitu sebesar 19,99 ppm.

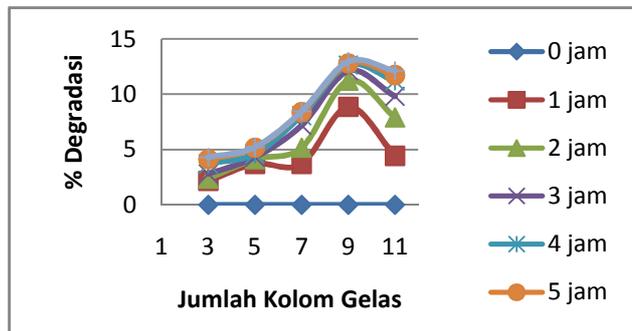
Data pengukuran absorbansi *methanil yellow* setelah proses degradasi ditentukan konsentrasi sisa *methanil yellow* setelah proses degradasi dengan menggunakan persamaan regresi linier. Dari data yang didapatkan, kecenderungan semakin kecilnya konsentrasi sisa *methanil yellow* dengan bertambahnya lama penyinaran. Konsentrasi sisa *methanil yellow* paling rendah diperoleh pada jumlah kolom gelas 9 buah dan lama penyinaran 6 jam, yaitu sebesar 17,39 ppm. Penurunan absorbansi ini diasumsikan sebagai penanda telah terjadi penurunan konsentrasi *methanil yellow* pada larutan.

Berdasarkan data konsentrasi sisa *methanil yellow* setelah proses degradasi, diperoleh pula data mengenai konsentrasi *methanil yellow* yang terdegradasi setelah lama penyinaran tertentu. Data ini didapat dari selisih antara konsentrasi awal *methanil yellow* sebelum proses degradasi (pada lama penyinaran 0 jam) dengan konsentrasi sisa *methanil yellow* setelah lama penyinaran  $t$  jam. Untuk contoh perhitungan, konsentrasi sisa *methanil yellow* sebesar 18,95 ppm berarti telah terdegradasi sebesar 1,03 ppm yang terdegradasi.

#### B. Jumlah Kolom Gelas

Adanya pengaruh jumlah kolom gelas terhadap proses degradasi *methanil yellow* terlihat dari perubahan konsentrasi larutan pada masing-masing variasi jumlah kolom gelas 3 buah, 5 buah, 7 buah, 9 buah dan 11 buah. Hubungan antara

persentase degradasi terhadap lama penyinaran pada setiap variasi jumlah kolom gelas ditunjukkan oleh Gambar 9.



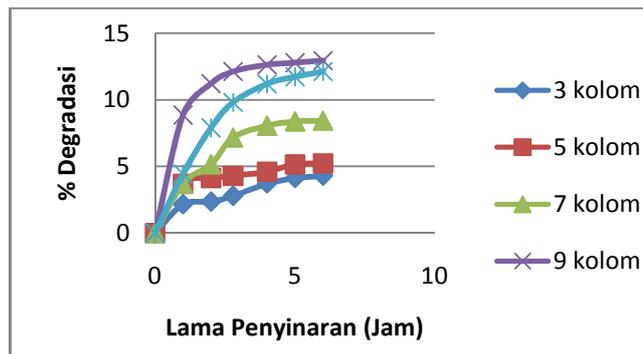
Gambar 2. Grafik Hubungan Persentase Degradasi *methanil yellow* terhadap Jumlah Kolom Gelas pada berbagai variasi lama penyinaran.

Grafik pada Gambar 2 memperlihatkan bahwa pada jumlah kolom gelas 9 buah, proses degradasi berlangsung paling baik. Persentase degradasi diperoleh pada lama penyinaran selama 6 jam pada setiap jumlah kolom gelas. Akan tetapi, pada keadaan tersebut banyak persentase degradasi tidak berubah secara signifikan antara jam ke-4 sampai jam ke-5. Hal ini diperkirakan karena telah banyak molekul *methanil yellow* yang terdegradasi sebelumnya, sehingga tidak berpengaruh secara signifikan terhadap kenaikan persentase degradasi. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa jumlah kolom gelas optimum adalah sebanyak 9 buah. Dengan demikian pada jumlah kolom gelas 9, aktivitas film fotokatalis meningkat yang ditandai dengan besarnya persentase degradasi *Methanil yellow*, sehingga keadaan ini merupakan keadaan yang paling baik digunakan untuk mendegradasi *Methanil yellow*.

Hal ini disebabkan oleh semakin banyak jumlah kolom gelas yang digunakan maka luas permukaan  $TiO_2$  yang kontak dengan *Methanil yellow*, akan semakin besar, sehingga radikal hidroksil yang dihasilkan semakin banyak dan akan meningkatkan proses degradasi *Methanil yellow*. Akan tetapi jika jumlah kolom gelas dikurangi maka persen degradasi dari *Methanil yellow* akan turun kembali. Hal ini disebabkan oleh jumlah sirkulasi *Methanil yellow* ke dalam kolom gelas berkurang sehingga kontak antara *Methanil yellow* dengan katalis  $TiO_2/SiO_2$  juga akan berkurang, keadaan ini akan menyebabkan menurunnya proses degradasi *Methanil yellow*.

### C. Lama Penyinaran

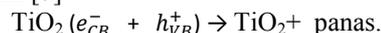
Pengaruh lama penyinaran terhadap persentase degradasi ditunjukkan oleh grafik pada Gambar 10. Dari grafik pada gambar 10 terlihat bahwa persentase degradasi semakin meningkat seiring dengan bertambahnya lama penyinaran. Hal ini dikarenakan semakin lama penyinaran maka semakin banyak jumlah foton yang dihasilkan sehingga semakin banyak elektron dan *hole* yang tergenerasi, akibatnya radikal  $\cdot OH$  yang dihasilkan juga semakin banyak. Radikal  $\cdot OH$  ini kemudian menyerang molekul *methanil yellow* dan mendegradasinya menjadi senyawa yang lebih sederhana.



Gambar 3. Grafik hubungan persentase degradasi *methanil yellow* terhadap lama penyinaran pada berbagai variasi kolom gelas.

Persentase degradasi paling besar diperoleh pada lama penyinaran selama 6 jam pada setiap jumlah kolom gelas. Akan tetapi, antara jam ke-4 sampai jam ke-5 persentase degradasi tidak berubah secara signifikan. Hal ini diperkirakan karena telah banyak molekul *methanil yellow* yang terdegradasi sehingga penambahan lama penyinaran tidak berpengaruh secara signifikan terhadap kenaikan persentase degradasi. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa lama penyinaran optimum adalah selama 4 jam. Persentase degradasi yang cukup besar ini disebabkan konsentrasi *methanil yellow* dalam larutan masih tinggi sehingga masih banyak molekul yang dapat diserang oleh radikal OH serta berinteraksi dengan situs aktif katalis. Selisih persentase degradasi tiap jamnya berturut-turut dari jam ke-1 sampai ke-6 adalah 8.85%, 2.36%, 0.90%, 0.515%, 0.15%, dan 0.15%.

Kenaikan persen degradasi yang kecil ini disebabkan oleh sedikitnya jumlah elektron yang mencapai permukaan katalis karena terjadi proses rekombinasi elektron-*hole* sesuai dengan persamaan reaksi [7]



Hal ini dapat dipahami sebagai akibat sedikitnya konsentrasi *methanil yellow* yang tersisa sehingga keterbatasan proses transfer massa pada reaktor fotokatalitik film membatasi interaksi molekul dengan situs aktif katalis maupun radikal OH.

Kenaikan persentase degradasi yang sangat kecil pada jam ke-4 dan ke-5 menandakan tidak terjadi perubahan konsentrasi *methanil yellow* yang signifikan. Hal ini diperkirakan karena telah banyak molekul *methanil yellow* yang terdegradasi sehingga penambahan lama penyinaran tidak berpengaruh secara signifikan terhadap kenaikan persentase degradasi. Oleh karena itu, dapat disimpulkan lama penyinaran optimum adalah selama 4 jam.

### D. Kondisi Optimum

Kondisi optimum merupakan suatu keadaan di mana reaktor fotokatalitik dapat bekerja secara efektif dan efisien. Dalam penelitian ini, keefektifan reaktor ditentukan oleh jumlah kolom gelas dan lama penyinaran. Berdasarkan pada pembahasan sebelumnya, lama penyinaran selama 4 jam dianggap merupakan kondisi reaktor yang paling efektif dan efisien dalam mendegradasi *methanil yellow*. Hubungan

antara jumlah kolom gelas terhadap persentase degradasi pada lama penyinaran 4 jam ditunjukkan oleh Gambar 4.

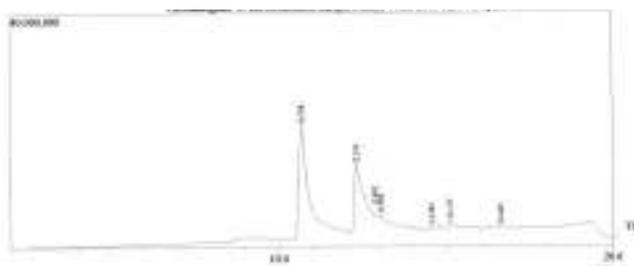


Gambar 4. Grafik hubungan jumlah kolom gelas terhadap persentase degradasi *methanil yellow* pada lama penyinaran 4 Jam.

Berdasarkan grafik dapat dilihat pada kolom gelas ke 9 terjadi kenaikan persentase degradasi sebesar 12.63%. Semakin banyak jumlah kolom gelas yang digunakan maka luas permukaan TiO<sub>2</sub> yang kontak dengan *Methanil Yellow* akan semakin besar, sehingga semakin banyak elektron dan *hole* yang tergenerasi. Akibatnya, radikal OH yang dihasilkan juga semakin banyak [1].

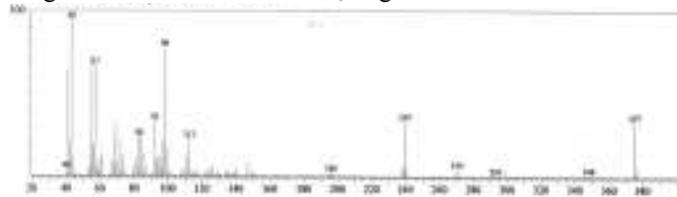
#### E. Identifikasi dengan GC-MS

Identifikasi *Methanil yellow* murni dilakukan untuk melihat bagaimana keadaan awal *methanil yellow* sebelum proses degradasi. Hasil GC ditunjukkan pada Gambar 5. Berdasarkan kromatogram pada gambar 5, terlihat dua puncak yang jelas. Hal ini dikarenakan senyawa *methanil yellow* belum mengalami degradasi.



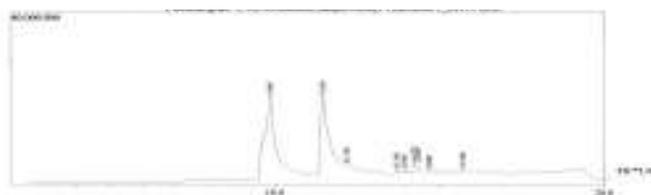
Gambar 5. Kromatogram *methanil yellow* sebelum degradasi

Berdasarkan hasil MS, puncak yang terelusi pada waktu retensi (RT) 10,7 teridentifikasi merupakan senyawa dengan m/z sebesar 375 seperti ditunjukkan pada Gambar 13. Dapat diketahui yang teridentifikasi adalah senyawa *methanil yellow* dengan berat molekul total 375,38 g/mol.



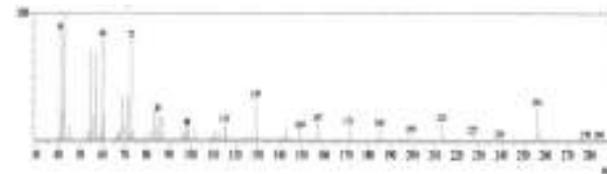
Gambar 6. Spektrum Massa *Methanil yellow* RT = 10,7 menit

Dari hasil identifikasi dengan GC-MS diperoleh bentuk kromatogram seperti ditunjukkan pada Gambar 6. Pada Gambar terlihat banyak puncak yang saling tumpang tindih yang menandakan bahwa produk degradasi tidak terpisah dengan baik. Hal ini dikarenakan larutan uji yang telah mengalami proses fotokatalisis, mengandung bermacam-macam produk degradasi sehingga sulit dilakukan pemisahan dengan GC.



Gambar 6. Kromatogram *methanil yellow* setelah degradasi

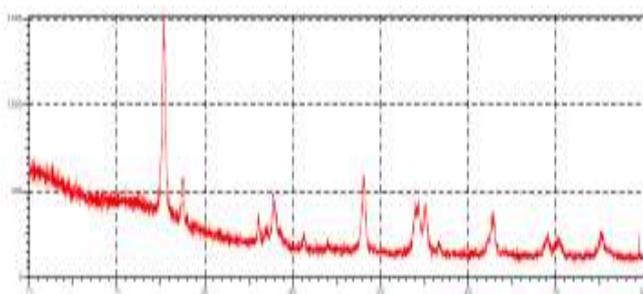
Berdasarkan hasil MS, puncak-puncak yang terelusi pada waktu retensi (RT) 9.9 teridentifikasi merupakan senyawa dengan m/z sebesar 284 seperti ditunjukkan pada Gambar 7. Penurunan berat molekul ini menandakan *methanil yellow* telah mengalami degradasi. Spektrum pada Gambar 4.15 memperlihatkan ion molekul dengan m/z = 284 terpecah menjadi fragmen dengan m/z = 256 dan kehilangan massa sebesar 28 diduga karena lepasnya N<sub>2</sub>. Sementara itu, ion fragmen dengan m/z = 239 yang pecah menjadi ion fragmen dengan m/z = 227 kehilangan massa molekul sebesar 12 yang diduga karena lepasnya radikal [·C]. Kemudian menjadi fragmen-fragmen lain dengan m/z yang lebih kecil berturut-turut 213, 199, 185, 171, 157. Setiap ion fragmen kehilangan massa molekul sebesar 14 yang diperkirakan akibat lepasnya [CH<sub>2</sub>]. Kemudian ion molekul dengan m/z = 85 terpecah menjadi fragmen lain dengan m/z = 73 kehilangan massa molekul sebesar 12 yang diperkirakan akibat lepasnya radikal C.



Gambar 6. Spektrum Massa Produk Degradasi dengan RT = 9.255 menit

#### F. Karakterisasi TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> dengan XRD

Karakterisasi dengan XRD dilakukan untuk mengetahui struktur Kristal TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> yang digunakan. Sampel yang dikarakterisasi dengan XRD adalah pasta TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> yang telah dikalsinasi pada suhu 450°C yang kemudian digerus menjadi serbuk kembali. Hasil karakterisasi XRD berupa pola difraksi (difraktogram) yang terdiri dari puncak-puncak karakterisasi TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>, dapat dilihat pada Gambar 19.



Gambar 7. Pola XRD Sampel TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>

Pada Gambar 7 terlihat puncak-puncak yang dapat memberikan informasi identitas dari bentuk Kristal *anatase* dan *rutile*. Puncak yang tajam pada gambar menginformasikan bahwa lapisan TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> terdiri dari kristal *anatase*. Hal ini menunjukkan bahwa teknik kalsinasi yang digunakan pada larutan TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> memberikan kristal anatase. Namun puncak-puncak yang diperoleh juga dapat menginformasikan bentuk kristal *rutile*. Bentuk kristal TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> dapat diketahui dengan membandingkan nilai 2θ atau d (Å) hasil pengukuran dengan kartu interpretasi data *anatase* dan *rutile*.

Tabel 5

Nilai d (Å) dari hasil pengukuran dan kartu interpretasi data kristal sintesis TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>

Kartu Interpretasi Data d (Å)		Hasil Pengukuran TiO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub> d (Å)	
Rutile	Anatase	Puncak	Jenis kristal
3.25	3.52	3,51585	Anatase
2.49	2.38	2,48549	Rutile
1.69	1.688	1,68864	Anatase

Dari hasil pengukuran XRD, kristal yang diperoleh dari katalis TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> yang digunakan berupa campuran *anatase* dan *rutile*. Hal ini dapat dilihat dari puncak – puncak yang dihasilkan. Jika dibandingkan dengan kartu interpretasi, data dari hasil pengukuran TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> hampir sama.

Pola difraktogram yang diperoleh juga dapat digunakan untuk menentukan ukuran Kristal (crystallite size) TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> berdasarkan nilai FWHM (full width at half-maximum) pada berbagai puncak dengan menggunakan persamaan Scherrer,

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta}$$

Dengan D adalah ukuran kristal, λ=0,154 nm adalah panjang gelombang sinar-X, β adalah nilai FWHM masing-masing puncak karakteristik, θ adalah sudut difraksi dan k=0,94 adalah sebuah konstanta. Hasil perhitungan masing-masing puncak diperoleh ukuran Kristal TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> yaitu 19,1 nm. Ukuran kristal ini termasuk kedalam kristal yang berukuran nanometer, karena ukuran kristalnya berkisar antara 0 – 100 nm. Kristal yang berukuran nanometer dapat meningkatkan aktivitas fotokatalis TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>, ini disebabkan karena kristal memiliki luas permukaan yang sangat besar sehingga jumlah *methanil yellow* yang kontak dengan katalis semakin banyak, maka jumlah *methanil yellow* yang terdegradasi semakin banyak.

#### IV. KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan didapatkan beberapa kesimpulan:

1. Kondisi optimum jumlah kolom gelas degradasi *Methanil yellow* 20 ppm pada reaktor fotokatalitik TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> adalah pada 9 buah kolom gelas.
2. Kondisi optimum lama penyinaran degradasi *Methanil yellow* pada reaktor fotokatalitik TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> pada 4 jam. Semakin lama penyinaran maka hasil degradasi semakin baik.
3. Dari hasil identifikasi menggunakan GC-MS diperoleh banyak puncak yang mengonfirmasikan bahwa telah terjadi degradasi pada molekul *methanil yellow*.
4. Dari hasil karakterisasi Kristal TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> dengan menggunakan XRD diperoleh jenis Kristal TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> adalah jenis anatase dan rutil, dengan ukuran Kristal sebesar 19,1nm.

#### V. DAFTAR PUSTAKA

- [1] Fujishima, A., Hashimoto, and T. Watanabe.1999. *TiO<sub>2</sub> Photocatalysis Fundamentals and Applications*. BKC, Inc . Japan.
- [2] Hardeli dan Andromeda. 2009. *Aplikasi Fotokatalitik TiO<sub>2</sub> untuk Degradasi Asam lemak*. Padang.
- [3] Hasanah, Muffidatul. 2010. "Penambahan SiO<sub>2</sub> Pada Sol TiO<sub>2</sub> Sebagai Pelapis Keramik Untuk Aplikasi Keramik Anti Jamur, Anti Noda Dan Anti Bakteri" skripsi. Padang: UNP
- [4] J.M.Hermann, *Recent Advances in Catalysis*.,L.A3 (2005) 16-18.
- [5] Linsebigler, A. L., Lu Guanguan and Yates Jr, T.1995. *Photocatalysis on TiO<sub>2</sub> Surface: Principles, Mechanisms, and Selection Result*, Chem,Rev., 95, 735-758.
- [6] Safni.2007.*Degradasi Methanil yellow secara sonolisis dan fotolisis dengan penambahan TiO<sub>2</sub> anatase*. UNAND: Padang
- [7] Slamet, R. Arbianti, dan E.Marliana. 2007. *Pengolahan Limbah Cr(IV) dan Fenol dan dengan Fotokatalis Serbuk dan CuO/TiO<sub>2</sub>*. Departemen Teknik Gas dan Petrokimia, Universitas Indonesia. VOL. 11. 78-85.