

SINTESIS DAN KARAKTERISASI ZEOLIT-TiO₂ DARI ZEOLIT ALAM TERMODIFIKASI

Synthesis and Characterization of Zeolite-TiO₂ from Modified Natural Zeolite

LENNY M. ESTIATY

Pusat Penelitian Geoteknologi LIPI
Komplek LIPI, Jl. Sangkuriang Gd. 70, Bandung 40135
Telp. 022 2503654
e-mail: lennymarilynlestiaty@yahoo.co.id

ABSTRAK

Perkembangan industri tekstil di Indonesia secara langsung mampu memenuhi tuntutan kebutuhan dalam negeri, komoditas ekspor, dan peningkatan lapangan kerja. Peningkatan industri tekstil tentunya tidak luput dari persoalan lingkungan. Industri tekstil banyak mengeluarkan limbah cair diantaranya yang mengandung zat warna yang bersifat *non-biodegradable*, stabil, dan beracun. Pengolahan zat warna limbah tekstil dapat dilakukan dengan berbagai cara, salah satunya dengan fotokatalis zeolit-TiO₂. Aktifitas fotokatalis TiO₂ dapat ditingkatkan melalui pengembangan pada material pendukung zeolit. Penelitian ini dilakukan untuk mendapatkan teknologi proses sintesis zeolit-TiO₂ melalui penanaman Ti(IV) pada zeolit alam termodifikasi dengan metode *batch*. Tujuannya untuk membuat fotokatalitik zeolit-TiO₂ serta mempelajari karakteristiknya. Pada zeolit alam dilakukan proses pemurnian dan modifikasi terlebih dahulu agar adsorpsi Ti(IV) oleh zeolit lebih optimal. Hasil karakterisasi dengan Difraksi Sinar-X (XRD) menunjukkan perbandingan pergeseran spektra difraktogram pada zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂ hanya sedikit, berarti penanaman Ti(IV) berhasil dilakukan tanpa merusak sifat alamiah zeolit alam. Hasil spektrofotometer UV-Vis menunjukkan semakin tinggi konsentrasi Ti yang digunakan, semakin banyak adsorpsi Ti(IV) oleh zeolit-H. Pada konsentrasi larutan Ti awal 860,10 ppm, zeolit masih menunjukkan kenaikan adsorpsi Ti(IV) sehingga masih memungkinkan mengadsorpsi Ti(IV) di atas konsentrasi tersebut. Proses penanaman Ti(IV) optimum tercapai pada konsentrasi Ti 255,15 ppm.

Kata kunci : Zeolit alam, zeolit-H, zeolit-TiO₂, metode batch, industri tekstil

ABSTRACT

The development of textile industry can directly fulfill the domestic needs, export commodities, and increases employment. Textile Industries generate lot of waste-water containing dyes that are chemically non-biodegradable, stable, and toxic. The treatment of the textile dye waste-water can be solved in various ways, one of them is by adsorption using zeolite-TiO₂ photocatalyst. The TiO₂-photocatalytic activity can be improved through developing of the zeolite supporting materials. In this research, a photocatalytic zeolite-TiO₂ has been designed, prepared and characterized in batch method. The natural zeolite was purified and modified to optimize its adsorption of Ti(IV). The results of characterization by X-ray Diffraction Spectroscopy reveal that there are a slight shift of diffractogram spectra on natural zeolite, zeolite-H, and zeolite-TiO₂, suggesting that the impregnation of Ti(IV) was successfully conducted without damaging the structure of the natural zeolite. The UV-Vis spectrophotometer data show that the higher the Ti concentration used, the more the adsorption of Ti(IV) by the modified-zeolite. At initial Ti(IV) concentration of 860.10 ppm, the modified-zeolite adsorption is still increasing, so the Ti(IV) zeolite adsorption above the concentration is still possible. The best impregnation process of Ti(IV) is reached at Ti concentration of 255.15 ppm.

Keywords : Natural zeolite, zeolite-H, zeolite-TiO₂, batch method, textile industry

PENDAHULUAN

Akhir-akhir ini masalah pencemaran lingkungan semakin menarik perhatian masyarakat. Hal ini dapat dilihat dengan semakin banyaknya kasus-kasus pencemaran yang terungkap ke permukaan. Salah satu penyebabnya adalah perkembangan industri yang begitu pesat, seperti industri tekstil. Peningkatan industri tekstil tidak luput dari persoalan lingkungan, khususnya limbah cair berwarna yang dapat menghasilkan zat-zat berbahaya dan mencemari perairan. Limbah zat warna yang dibuang ke sungai yang berada di sekitar industri akan mengganggu aktivitas biologi yang ada. Zat warna sintetis yang dihasilkan dari industri tekstil umumnya bersifat *non-biodegradable*, stabil, dan beracun. Jenis pewarna yang digunakan sangat beraneka ragam sehingga penanganan limbah tekstil menjadi sangat rumit dan memerlukan beberapa langkah sampai limbah tersebut aman untuk dilepas ke lingkungan perairan (Wijaya, dkk., 2006).

Guna mendampingi perkembangan industri tekstil agar tidak memberikan efek negatif terhadap lingkungan, maka berbagai penelitian untuk pengembangan metode pengolahan limbah maupun peningkatan teknologi efisiensi setiap tahapan proses (industri bersih) telah dilakukan [Damas dkk., 2010; Sugiyana dkk., 2012; Ellouze dkk., 2012; Lo dkk., 2012].

Pengembangan material yang efektif untuk penghilangan zat warna sintetis banyak dikembangkan saat ini. Titanium oksida (TiO_2) diketahui sebagai material semikonduktor yang aktif sebagai fotokatalis. Aktifitas fotokatalis TiO_2 dapat ditingkatkan melalui pengembangan pada material pendukung. Salah satu material yang sangat potensial untuk digunakan pada proses ini adalah zeolit. Struktur zeolit terdiri atas rangka tiga dimensi $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$ tetrahedral. Ion aluminium dapat mengisi pusat tetrahedral empat atom oksigen, pengisian Si^{4+} dengan Al^{3+} menyebabkan adanya muatan negatif pada kisi. Muatan negatif ini diimbangi dengan adanya kation (Na^+ , K^+ atau Ca^{2+}). Kation-kation ini dapat ditukarkan dengan kation dari larutan seperti timbal, kadmium, tembaga, seng, titanium dan mangan (Panneerselvam, dkk., 2009). Dengan sifat tersebut, zeolit dapat digunakan sebagai material untuk pengemban Ti(IV) sehingga dapat digunakan untuk mendegradasi zat warna limbah tekstil. Namun, perlu dilakukan perlakuan terlebih dahulu terhadap zeolit agar Ti(IV) yang terikat lebih optimal.

Penelitian mengenai sintesis zeolit- TiO_2 telah banyak dilakukan sebelumnya dengan metode Dispersi Padat-padat (DPP) dan menunjukkan hasil yang cukup efektif. Namun, terdapat kelemahan, yaitu Ti(IV) kurang terikat pada pori-pori zeolit (Wijaya, dkk., 2006) dan struktur zeolitnya mengalami kerusakan sehingga sifat alamiah dari zeolit hilang.

Pada penelitian ini dilakukan sintesis zeolit- TiO_2 dari zeolit alam termodifikasi (zeolit-H) yang diharapkan dapat digunakan untuk mendegradasi zat warna limbah tekstil. Zeolit yang digunakan berasal dari Cikancra, Tasikmalaya. Tujuan dari penelitian ini adalah mendapatkan teknologi proses sintesis zeolit- TiO_2 yang tidak merusak struktur zeolit sehingga sifat alamiah zeolit tidak hilang serta mengetahui karakteristiknya.

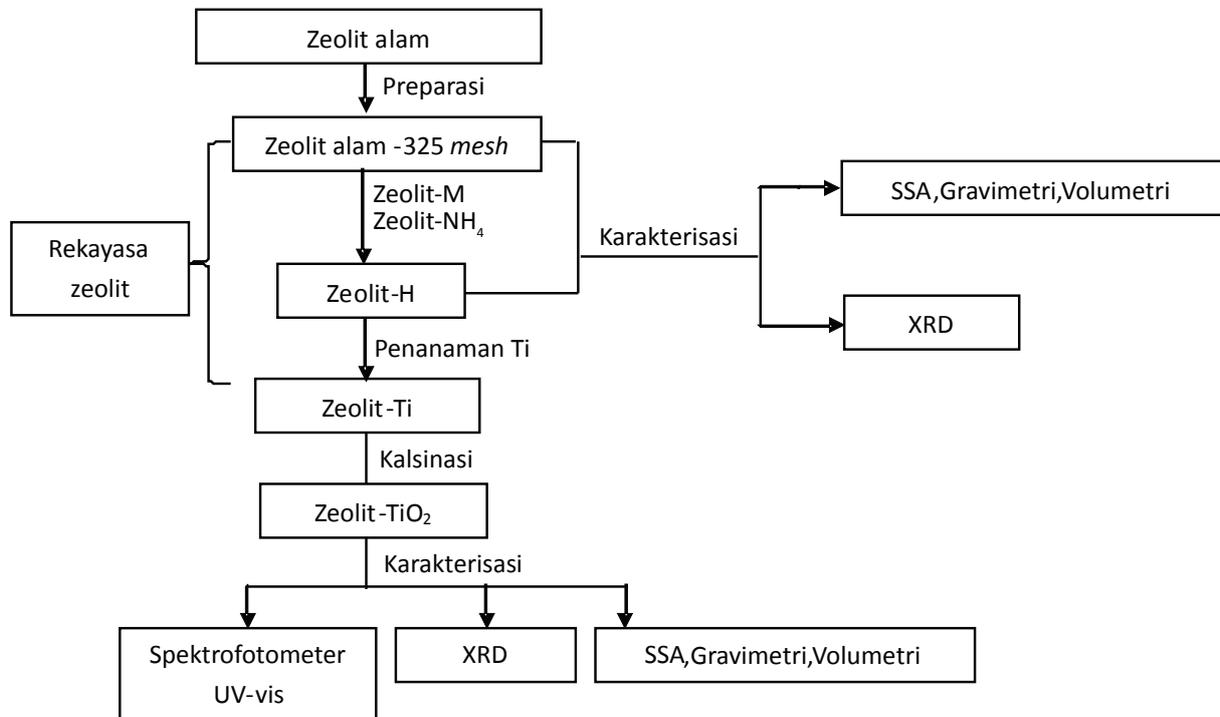
METODOLOGI

Sintesis Zeolit- TiO_2 dilakukan dengan metode *batch*, yaitu zeolit dikontakkan dengan pelarut dalam reaktor dengan waktu dan kecepatan putaran tertentu. Zeolit alam dihaluskan terlebih dahulu mencapai ukuran butir -325 mesh, kemudian dimurnikan dengan larutan HF untuk melepaskan pengotor SiO_2 dalam bentuk amorf dan dengan HCl untuk melepaskan pengotor logam. Selanjutnya zeolit tersebut dimodifikasi dengan larutan ammonium asetat 1 N, diaduk pada reaktor 105 rpm selama + 15 menit sehingga dihasilkan zeolit- NH_4 . Zeolit- NH_4 diaduk dengan HCl 0,5 N pada reaktor *batch* 105 rpm selama 15 menit pada suhu kamar sehingga dihasilkan zeolit-H. Zeolit alam dan zeolit-H ditentukan nilai KTK nya. Proses penanaman ion Ti(IV) dilakukan dengan penambahan ion Ti(IV) yang berasal dari larutan induk $(\text{NH}_4)_2\text{TiF}_6$ terhadap zeolit-H. Larutan induk $(\text{NH}_4)_2\text{TiF}_6$ yang ditambahkan sebanyak 75 mL dengan massa zeolit 6,5 gram dan diaduk pada reaktor. Zeolit-H tersebut ditanami (impregnasi) oleh Ti(IV) dari larutan $(\text{NH}_4)_2\text{TiF}_6$ 0,5 mol/L dengan konsentrasi 258,8 ppm; 394,5 ppm; 590,2 ppm; 710,8 ppm; 858,5 ppm (duplo). Untuk memisahkan filtrat larutan pada zeolit, dilakukan penyaringan dan filtratnya ditampung untuk dilakukan analisis. Zeolit-Ti dicuci, dan dikeringkan di dalam oven 105 °C selama 1 jam dan dilanjutkan dengan kalsinasi pada *furnace stuart* 300 °C selama 2 jam sehingga Zeolit-Ti berubah menjadi zeolit- TiO_2 . Zeolit alam, zeolit-H dan zeolit- TiO_2 dianalisis untuk mengetahui komposisi kimianya dengan SSA, gravimetri dan volumetri; untuk penyerapan larutan Ti dianalisis

oleh spektrofotometer dan analisis struktur zeolit dilakukan oleh XRD.

Secara ringkas tahapan penelitian ini meliputi preparasi awal percontohan, rekayasa zeolit alam dan karakterisasi seperti disajikan pada Gambar 1.

Konsentrasi asam yang ditambahkan tidak boleh terlalu tinggi agar tidak merusak sifat alamiah struktur zeolit karena aluminium dapat terekstrak atau melarut dari kerangka zeolit pada situs asam bronsted seiring dengan makin tingginya konsentrasi asam tersebut.



Gambar 1. Skema penelitian

HASIL DAN PEMBAHASAN

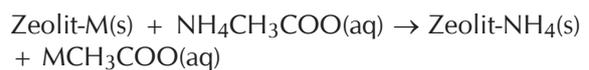
Pemurnian dan Modifikasi

Zeolit alam yang digunakan berukuran -325 mesh. Zeolit alam dimurnikan dengan larutan asam HF dan HCl untuk menghilangkan pengotor yang terikat yang tidak dibutuhkan pada struktur zeolit tersebut. Penambahan HF dilakukan untuk melepaskan pengotor SiO₂ dalam bentuk amorf yang berada di sekitar kristal zeolit sehingga SiO₂ sebagai garamnya (Fatimah, 2008). Reaksi yang terjadi sebagai berikut:

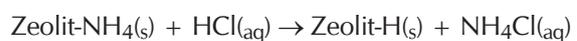


Penambahan HCl dilakukan untuk melepaskan pengotor-pengotor logam seperti Fe, Mg, Ca, Na, Al dan zat lain yang terdapat di dalam rongga atau permukaan zeolit yang tidak terlepas oleh pencucian HF.

Rangka atau rongga struktur zeolit yang berisi kation penetral merupakan situs asam, posisinya tidak mudah disubstitusi oleh kation Ti(IV), karena kation Ti(IV) termasuk asam keras. Maka zeolit tersebut perlu diubah menjadi situs asam lunak dengan cara memodifikasinya menjadi zeolit-H agar mudah disubstitusi oleh Ti(IV). Modifikasi dilakukan dengan larutan ammonium asetat 1 N, sehingga dihasilkan zeolit-NH₄. Pada perlakuan ini terjadi penukaran kation yang dapat dilihat dari reaksi berikut:



Selanjutnya, zeolit-NH₄ diaduk dengan HCl 0,5 N pada reaktor *batch* sehingga dihasilkan zeolit-H. Pada perlakuan ini terjadi penukaran kation yang dapat dilihat dari reaksi berikut:



HCl merupakan asam yang mampu melarutkan senyawa anorganik . Proses pengasaman dikontrol untuk mencegah terjadinya pelarutan Al dari kerangka zeolit (*Al framework*) .

Setelah proses pemurnian dan modifikasi, dilakukan analisis unsur-unsur dari zeolit alam dan zeolit-H untuk mengetahui perubahan kadar unsur-unsur yang terkandung di dalam zeolit.

Tabel 1. Komposisi unsur-unsur kimia dari zeolit alam dan zeolit-H

Senyawa	Zeolit alam (%)	Zeolit-H (%)
SiO ₂	72,3	76,7
Al ₂ O ₃	10,68	10,66
Fe ₂ O ₃	1,03	1,00
K ₂ O	0,88	0,83
Na ₂ O	0,88	0,37
CaO	2,93	1,19
MgO	0,35	0,30
MnO	0,001	<0,001
TiO ₂	0,39	0,31
P ₂ O ₅	0,11	0,11
LOI	9,64	7,88
H ₂ O ⁻	5,03	2,17

Dari Tabel 1 dapat dilihat bahwa komposisi utama dari zeolit didominasi oleh silika 72,3% dan alumina 10,68%. Selain itu, terdapat pula kation-kation (Fe³⁺, Na⁺, K⁺, Mn²⁺, Mg²⁺, Ca²⁺) yang berfungsi sebagai penyeimbang muatan negatif yang berasal dari ion aluminium dan silika yang mengisi pusat tetrahedron empat atom oksigen. Kadar Loss of Ignition (LOI) sebanyak 9,64%, berarti daya serapnya tinggi sehingga diduga zeolit tersebut berkadar tinggi .

Secara spesifik, penurunan kadar senyawa-senyawa pada zeolit-H dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2 menunjukkan terjadi penurunan kadar Al, Fe, K, Na, Ca, Mg, yang merupakan oksida bebas pada mineral tersebut setelah dilakukan proses pemurnian dan modifikasi. Hal ini berarti pengotor-pengotor dalam rongga zeolit tertarik keluar dan situs dari zeolit sudah berubah ke arah situs asam sehingga luas permukaannya bertambah,

Tabel 2. Persentase penurunan kadar unsur-unsur utama pada zeolit-H

Senyawa	Penurunan Kadar (%)
SiO ₂	4.4 (naik)
Al ₂ O ₃	0,19
Fe ₂ O ₃	0.02
K ₂ O	0.05
Na ₂ O	0.51
CaO	1.74
MgO	0.05
P ₂ O ₅	0
LOI	1.76
H ₂ O ⁻	2.86

diharapkan meningkatkan kemampuan zeolit dalam proses adsorpsi. LOI dan H₂O⁻ juga mengalami penurunan yang cukup besar karena pada zeolit-H sudah mengalami proses pemurnian dan modifikasi yang dapat menghilangkan kadar air dan kadar *volatile matter*. Terjadi kenaikan kadar SiO₂ yang cukup besar (4,4%), berarti adanya penghilangan pengotor-pengotor yang larut pada proses pemurnian dan modifikasi sehingga persentase silikat dalam kerangka menjadi tinggi karena kemurnian percontoh zeolit meningkat. Hal ini diperkuat dengan hasil analisis kapasitas tukar kation (KTK) zeolit alam dan zeolit-H yang dapat dilihat pada Tabel 3.

Tabel 3. Kapasitas tukar kation (KTK) zeolit alam dan zeolit-H

Sampel	KTK (meq/100g)
Zeolit alam	107,78
Zeolit-H	126,78

Semakin tinggi nilai KTK, semakin baik kualitas dari zeolit. Oleh karena itu, besarnya nilai KTK pada zeolit dapat digunakan untuk menduga kandungan mineral zeolit

Nilai Kapasitas Tukar kation (KTK) zeolit bergantung pada derajat substitusi jumlah atom Al³⁺ terhadap Si⁴⁺ yang menghasilkan muatan negatif pada kerangka zeolit. Semakin besar derajat substitusi menunjukkan semakin banyak kation alkali atau

alkali tanah yang diperlukan untuk menetralkan muatan negatif pada kerangka sehingga nilai KTK makin besar. Untuk meningkatkan derajat substitusi tersebut, dilakukan aktivasi terhadap zeolit alam dengan cara proses pemurnian dan modifikasi sehingga menghasilkan zeolit-H. Nilai KTK dari zeolit-H yaitu 126,78 meq/100g lebih tinggi dibandingkan zeolit alam sehingga kualitas zeolit-H lebih bagus dibandingkan dengan zeolit alam.

Proses Impregnasi

Proses penanaman ion Ti(IV) ke dalam zeolit-H hasil modifikasi dengan metode *batch*. Reaksi yang diharapkan terjadi adalah sebagai berikut :

$$\text{Zeolit-H(s)} + (\text{NH}_4)_2\text{TiF}_6 \text{ (aq)} \rightarrow (\text{Zeolit})^2\text{-Ti(s)} + 2\text{NH}_3\text{(aq)} + 6\text{F}^-\text{(aq)} + \text{H}_2\text{(g)}$$

Pada reaksi di atas, terjadi pertukaran ion H⁺ di dalam kerangka zeolit dengan ion Ti(IV) di dalam larutan induk (NH₄)₂TiF₆. Ion Ti(IV) memiliki medan elektrostatis yang kuat dan dapat berinteraksi dengan molekul yang memiliki kepolaran yang tinggi (Fatimah, 2008). Penambahan ion Ti(IV) tersebut dapat membuat zeolit lebih tahan terhadap lingkungan kimia dan panas.

Proses kalsinasi ini bertujuan untuk menghilangkan kation-kation yang tidak dibutuhkan dalam bentuk uap tetapi tidak mengubah kerangka alumino-silikat pada struktur zeolit dan pembentukan struktur zeolit agar semakin kuat serta terbentuk zeolit-TiO₂ (Prasetyo, dkk, 2011).

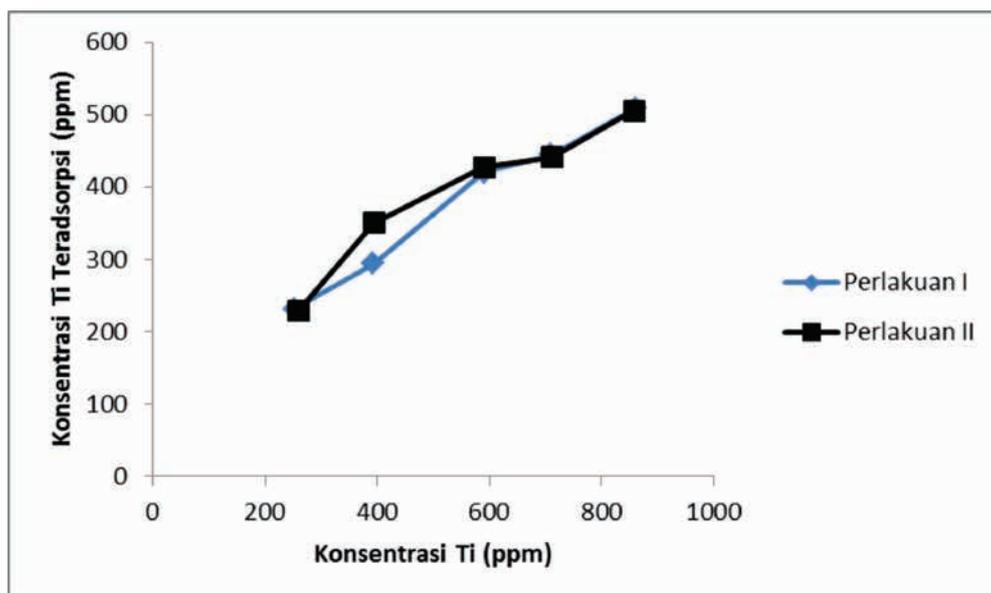
Tabel 4. Hasil analisis larutan Ti(IV) awal dan akhir

Konsentrasi (ppm)					
Ti Awal (Co)		Ti Akhir (Ce)		Ti Teradsorpsi	
I	II	I	II	I	II
251,55	258,75	20,06	30,50	231,49	228,25
393,30	394,50	99,46	44,18	293,84	350,32
590,55	590,15	170,56	163,22	419,99	426,93
709,95	710,75	264,96	270,18	444,99	440,57
861,70	858,50	352,68	352,68	509,02	505,82

Tabel 4 menunjukkan hasil analisis kadar Ti(IV) yang ditambahkan pada Zeolit-H, dengan 2 (dua) perlakuan (duplo) menghasilkan konsentrasi yang mendekati. Hasil analisis memperlihatkan terjadinya perbedaan konsentrasi ion Ti(IV) yang signifikan antara awal dengan akhir. Hal ini menunjukkan penanaman Ti(IV) ke dalam struktur zeolit berhasil dilakukan.

Adapun Gambar 2 menunjukkan hasil analisis adsorpsi ion Ti(IV) oleh zeolit-H dari larutan (NH₄)₂TiF₆.

Dari grafik di atas, selisih yang dihasilkan pada perlakuan I dan II tidak terlalu jauh perbedaannya, hal ini berarti proses yang dilakukan sudah akurat. Pada perlakuan I dan II mengalami peningkatan adsorpsi Ti seiring dengan naiknya konsentrasi yang



Gambar 2. Grafik adsorpsi Ti(IV) oleh zeolit pada perlakuan I dan II

digunakan terhadap zeolit.

Pada perlakuan I dan II dibuat rata-ratanya sehingga diperoleh data seperti telah disajikan pada Tabel 5.

Tabel 5. Konsentrasi Ti(IV) rata-rata yang teradsorpsi per gram zeolit

Konsentrasi awal (ppm)	Ti Teradsorpsi (ppm)	Ti Teradsorpsi per gram zeolit (ppm)
255,15	229,87	35,36
393,90	322,08	49,55
590,35	423,46	65,15
710,35	442,78	68,12
860,10	507,42	78,06

Berdasarkan Tabel 5 terlihat bahwa dengan semakin meningkatnya konsentrasi Ti, maka semakin meningkat pula jumlah Ti yang teradsorpsi per gram zeolit. Hal ini menunjukkan penanaman Ti(IV) ke dalam struktur zeolit berhasil dilakukan.

Hasil perhitungan konsentrasi Ti awal dan konsentrasi Ti pada kesetimbangan dari zeolit-H yang telah dicampurkan oleh 75 mL larutan (NH₄)₂TiF₆ dapat dilihat pada Tabel 6.

Untuk mengetahui jumlah adsorbat terserap per massa padatan pada kesetimbangan maka data diolah dengan menggunakan persamaan berikut:

$$q_e = (C_o - C_e) \times \frac{V}{m}$$

Keterangan:

- q_e = jumlah adsorbat terserap per massa padatan pada kesetimbangan, mg/g
- C_o = konsentrasi awal larutan, mg/ L
- C_e = konsentrasi larutan pada kesetimbangan, mg/L
- m = massa zeolit, g
- v = volume larutan pada percobaan, L

Dari Tabel 6. dapat dilihat bahwa harga q_e terus meningkat seiring dengan meningkatnya konsentrasi larutan (NH₄)₂TiF₆ awal. Harga q_e dengan konsentrasi awal larutan 860,10 masih cenderung meningkat. Hal ini menunjukkan bahwa kecenderungan zeolit-H untuk mengadsorpsi Ti(IV) dengan konsentrasi yang lebih tinggi pada penelitian

Tabel 6. Konsentrasi larutan Ti teradsorpsi per massa padatan pada kesetimbangan

No	Kons. awal (Co) (ppm)	Kons. kesetimbangan / Kons.akhir (Ce) (ppm)	q _e (mg/g)
1	255,15	25,80	2,6710
2	393,90	71,82	4,0422
3	590,35	166,89	4,9261
4	710,35	267,57	5,1345
5	860,10	352,68	5,8733

ini masih dapat dilakukan.

Untuk menentukan kondisi optimum terjadinya adsorpsi Ti(IV) oleh zeolit-H, harus ditentukan proses adsorpsi yang paling besar. Menurut Erdem dkk., (2004) persentase adsorpsi ion logam dihitung dengan persamaan berikut:

$$\% \text{ adsorpsi} = \frac{C_{awal} - C_{akhir}}{C_{awal}} \times 100\%$$

Hasil perhitungan persentase adsorpsi Ti oleh zeolit-H ditunjukkan pada Tabel 7.

Tabel 7. Persentase (%) adsorpsi larutan Ti oleh Zeolit-H

No	Konsentrasi Awal (ppm)	Adsorpsi Ti (%)
1	255,15	92,01
2	393,90	88,80
3	590,35	72,34
4	710,35	62,67
5	860,10	59,07

Dari Tabel 7 dapat dilihat bahwa persentase adsorpsi Ti mengalami penurunan seiring dengan meningkatnya konsentrasi larutan yang digunakan. Hal ini sesuai dengan yang dikemukakan oleh Erdem dkk., (2004) bahwa secara umum semakin tinggi konsentrasi larutan awal, maka semakin rendah persentase adsorpsi ion logam oleh zeolit. Pada konsentrasi tertentu akan tercapai adsorpsi yang konstan karena zeolit sudah jenuh untuk mengadsorpsi ion logam. Kundari dan Wiyuniati (2008) menggunakan variasi konsentrasi logam tembaga (Cu²⁺) sebesar 10-3000 ppm pada percobaan ad-

sorpsi limbah pencuci PCB oleh zeolit, sedangkan Erdem dkk (2004) menggunakan variasi konsentrasi logam tembaga (Cu²⁺) sebesar 100-400 ppm pada percobaan penghilangan logam berat oleh zeolit alam. Pada penelitian ini variasi konsentrasi logam (Ti) yang digunakan 251,6-861,7 ppm dan persentase adsorpsi yang paling besar terjadi pada konsentrasi yang paling rendah (251,6 ppm) yaitu 92,01 %, konsentrasi tersebut hampir mendekati persentase adsorpsi 100%.

Zeolit-H yang telah ditanami Ti(IV) dianalisis, sehingga dapat diketahui berapa banyak konsentrasi Ti yang berada pada zeolit-TiO₂ dan dapat dibandingkan dengan konsentrasi Ti yang berada dalam zeolit alam dan zeolit-H, seperti terlihat pada Tabel 8.

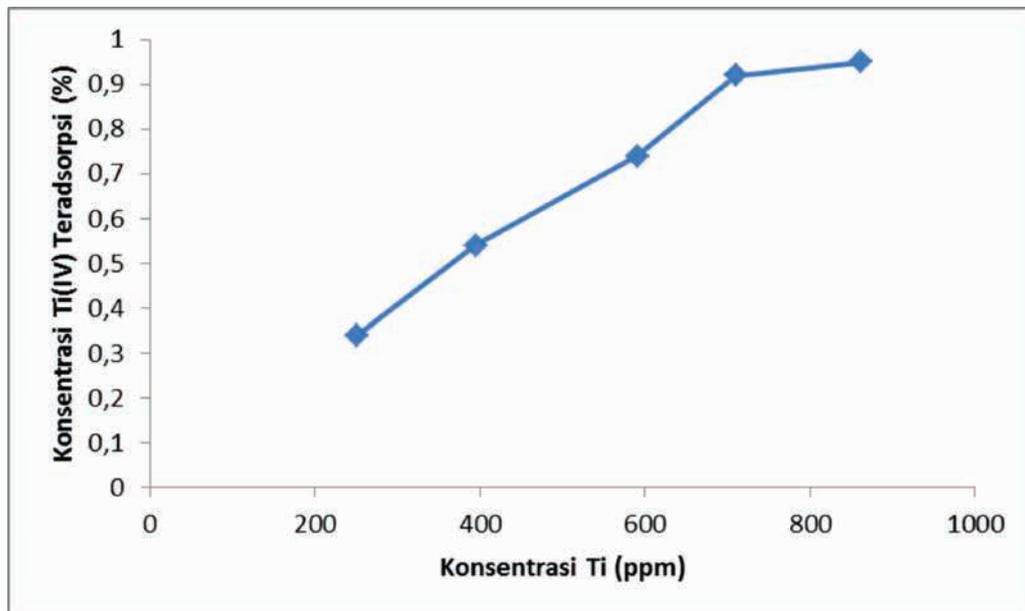
Tabel 8. Persentase TiO₂ pada zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂

Zeolit alam (%)	Zeolit-H (%)	Zeolit-TiO ₂ (%)
0,39	0,31	0,34 (251,6 ppm)
		0,54 (394,5 ppm)
		0,74 (590,2 ppm)
		0,92 (710,0 ppm)
		0,95 (861,7 ppm)

Tabel 8 menunjukkan persentase TiO₂ yang terdapat pada zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂. Kadar TiO₂ pada zeolit-H menurun dibandingkan dengan zeolit alam, karena zeolit-H telah mengalami proses pemurnian dan modifikasi sehingga TiO₂ pada zeolit-H terlarut sebagian pada proses tersebut. Setelah dilakukan penanaman dengan variasi konsentrasi Ti, TiO₂ mengalami peningkatan. Hal ini berarti Ti berhasil masuk ke dalam rongga zeolit.

Gambar 3 menunjukkan grafik konsentrasi Ti(IV) yang berhasil ditanamkan pada zeolit-H dengan variasi konsentrasi larutan Ti.

Terlihat bahwa persentase Ti(IV) dalam zeolit-TiO₂ meningkat seiring dengan naiknya konsentrasi larutan Ti yang digunakan. Hal tersebut menunjukkan bahwa semakin tinggi konsentrasi yang digunakan terhadap zeolit, semakin tinggi pula persentase Ti dalam zeolit-TiO₂. Pada konsentrasi tertentu akan tercapai persentase kenaikan konsentrasi yang konstan karena zeolit sudah jenuh oleh ion logam yang diadsorpsi atau menurun karena terjadi desorpsi (Erdem dkk., 2004). Selanjutnya dapat dilihat bahwa pada konsentrasi 251,6; 394,5; 590,2; dan 710 ppm terjadi kenaikan adsorpsi Ti(IV) cukup besar, tetapi pada konsentrasi 861,7 ppm kenaikannya sedikit karena zeolit-H yang ditanami Ti(IV) sudah



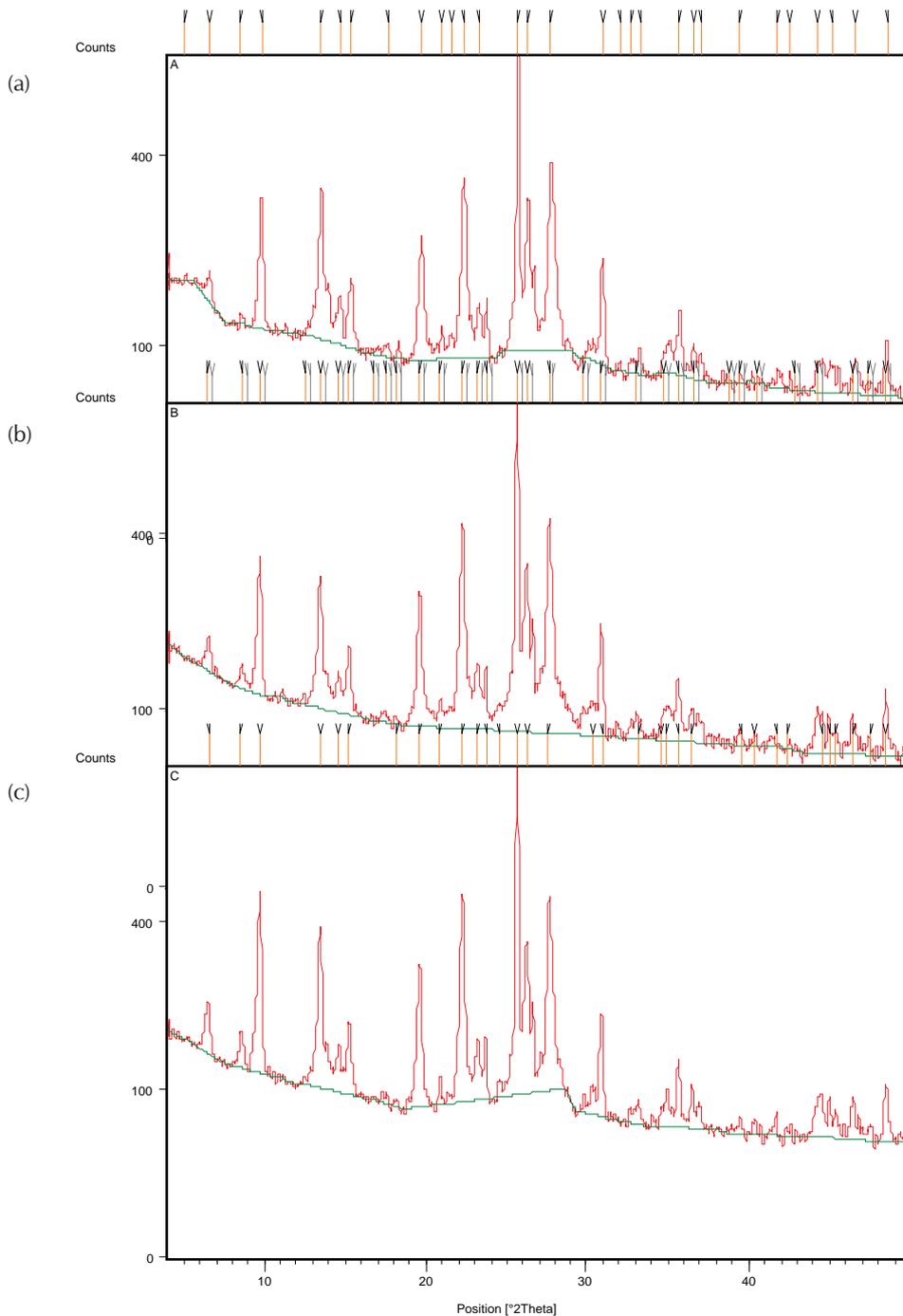
Gambar 3. Konsentrasi Ti(IV) yang tertanam (%)

mulai jenuh.

4.2 Karakterisasi Spektroskopi Difraksi Sinar-X

Pada spektrum zeolit alam terdapat *peak list* dengan intensitas yang tajam pada daerah $2\theta = 9,856^\circ$; $13,538^\circ$; $15,392^\circ$; $19,720^\circ$; $22,306^\circ$; $25,738^\circ$;

$26,364^\circ$; $27,756^\circ$; $31,001^\circ$. *Peak list* tersebut dibandingkan dengan *database* JCPDS-ICDD (*Joint Committee on Powder Diffraction Standards – International Center for Diffraction Data*). JCPDS-ICDD merupakan sekumpulan data *Powder XRD* dari hasil penelitian yang telah dilakukan oleh peneliti di seluruh dunia. Kecocokan *peak list* zeolit alam

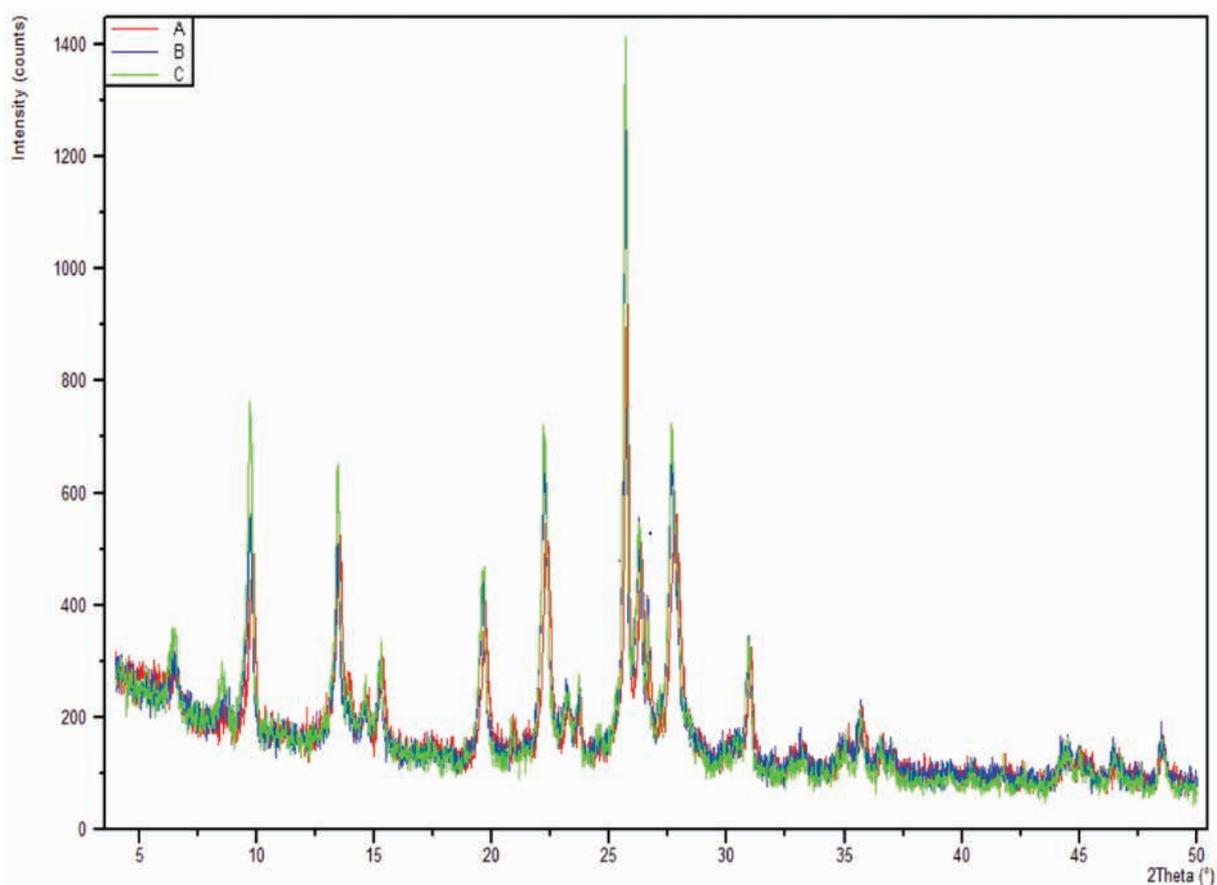


Gambar 4. Spektrum XRD: a) zeolit alam, b) zeolit-H, c) zeolit-TiO₂

dengan *database* merupakan karakteristik untuk *mordenite* (*Ca-Exchange*) dengan rumus formula $\text{Ca}_{0.40}\text{Al}_{0.98}\text{Si}_{5.03}\text{O}_{12}(\text{H}_2\text{O})_3$. Pada spektrum zeolit-H dan zeolit-TiO₂, *peak list* dengan intensitas yang tajam tidak mengalami perubahan, sedangkan beberapa *peak list* dengan intensitas yang rendah mengalami perubahan posisi 2θ dan terbentuknya beberapa puncak baru. *Peak list* pada zeolit-H menunjukkan mineral *mordenite* (*Ca-exchanged*) dan *quartz*, sedangkan pada zeolit-TiO₂ menunjukkan mineral *mordenite* (*Ca-exchanged*) dan *silicon oxide- β* . Hal ini menunjukkan bahwa proses penanaman Ti berhasil dilakukan tanpa merusak sifat alamiah struktur zeolit. Pergeseran posisi 2θ pada zeolit-H dan zeolit-TiO₂ dikarenakan perlakuan modifikasi dan impregnasi terhadap zeolit. Kemudian terbentuknya beberapa puncak baru menandakan bahwa telah terbentuk senyawa atau fasa baru. Pada zeolit-H, terbentuk mineral *quartz*, sedangkan pada zeolit-TiO₂ terbentuk mineral *silicon oxide- β* . Terbentuknya mineral *quartz* dan *silicon oxide- β* sesuai dengan analisis unsur SiO₂ dari zeolit alam dan zeolit-H serta zeolit-TiO₂ yang mengalami peningkatan.

Untuk melihat tingkat kristanilitas dari zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂ dapat dilihat pada Gambar 5.

Pada grafik di atas, terlihat bahwa secara umum tingkat kristanilitas mengalami peningkatan dari zeolit alam ke zeolit-H, dari zeolit-H ke zeolit-TiO₂. Tingkat kristanilitas tersebut menunjukkan kemurnian struktur zeolit tersebut. Semakin tinggi tingkat kristanilitas pada zeolit, maka semakin tinggi tingkat kemurniannya. Pada Gambar 5, tingkat kristalinitas dari zeolit alam ke zeolit-H mengalami peningkatan, berarti zeolit-H lebih murni dibandingkan zeolit alam. Dari zeolit-H ke zeolit-TiO₂ juga mengalami peningkatan kristalisasi, hal ini berarti zeolit-TiO₂ semakin murni. Proses penanaman TiO₂ sudah berhasil dilakukan, yang dapat dilihat dari struktur zeolit-TiO₂ tingkat kemurniannya tinggi dengan pengotor yang sedikit sekali. Adapun mineral TiO₂ dalam struktur zeolit tidak terdeteksi oleh XRD yang menunjukkan TiO₂ masuk ke dalam rongga-rongga zeolit dan tidak membentuk kristal.



Gambar 5. Spektrum XRD : A= zeolit alam; B = zeolit-H; C = zeolit-TiO₂

KESIMPULAN

Teknologi proses sintesis zeolit-TiO₂ telah dilakukan tanpa merusak struktur zeolit sehingga sifat alamiah zeolit tidak hilang dan dapat dipakai dalam pengolahan zat warna limbah tekstil yaitu sebagai fotokatalis zeolit-TiO₂ untuk dapat mendegradasi zat warna. Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan, proses pemurnian dan modifikasi zeolit alam yang dilakukan dapat meningkatkan nilai KTK, sehingga adsorpsi zeolit diharapkan lebih optimal. Dari spektrofotometer UV-Vis menunjukkan bahwa semakin tinggi konsentrasi larutan Ti yang digunakan, semakin banyak Ti(IV) yang terserap pada zeolit-H. Dari analisis AAS, Ti(IV) berhasil ditanamkan pada zeolit-H. Pada konsentrasi larutan Ti awal 860,10 ppm, konsentrasi Ti yang berada di dalam zeolit-TiO₂ sebesar 0.95%. Hasil karakterisasi dengan Difraksi Sinar-X (XRD) menunjukkan perbandingan pergeseran spektra difraktogram pada zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂ hanya sedikit. Intensitas dari zeolit alam, zeolit-H, dan zeolit-TiO₂ berturut-turut adalah 1000, 1300, dan 1400. Tingkat kristanilitas menunjukkan kemurnian struktur zeolit tersebut. Semakin tinggi tingkat kristanilitas pada zeolit, maka semakin tinggi tingkat kemurniannya. Artinya Penanaman Ti pada zeolit alam hasil modifikasi berhasil dilakukan tanpa merusak sifat alamiah zeolit. Hal ini sesuai dengan yang diharapkan dengan kata lain teknologi proses untuk pembuatan zeolit-TiO₂ telah berhasil. Penelitian ini dapat dilanjutkan dengan memperbesar konsentrasi larutan Ti yang dipakai pada proses sehingga dapat diketahui penyerapan Ti yang maksimal.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada Bapak Ka. Pusat Penelitian Geoteknologi-LIPI sebagai Kuasa Pengguna Anggaran 2012 dan Ibu Dewi Fatimah serta rekan-rekan di laboratorium Kimia Mineral Pusat Penelitian Geoteknologi-LIPI yang telah membantu selama penelitian berlangsung.

DAFTAR PUSTAKA

Damas S. Barredo, Miranda, M.I., Alcaina, Piá, A. Bes, Clar, M.I. Iborra, Clar, A. Iborra. and Roca, J.A. Mendoza. 2010. Ceramic membrane behavior in textile wastewater ultrafiltration. *Desalination* 250: 623–628.

- Ellouze, E., Tahri, N., dan Amar, R. B. 2012. Enhancement of textile wastewater treatment process using Nanofiltration. *Desalination* 286: 16–23
- Erdem, E., Karapinar, N., dan Donat, R. 2004. The removal of heavy metal cations by natural zeolites. *Journal of Colloid and Interface Science*. 280(2): 309-314.
- Fatimah, D. 2008. Pembuatan mordenit-Cu dari mordenit alam dengan metode batch. *Prosiding Pemaparan Hasil Penelitian Puslit Geoteknologi 2008*. Bandung
- Kundari, N.A & Wiyuniati, S. 2008. Tinjauan kesetimbangan adsorpsi embaga dalam limbah pencuci PCB dengan zeolit. *Seminar Nasional IV SDM Tenaga Nuklir*. Yogyakarta 25-26 Agustus 2008.
- Lo, Chris K.Y; Yeung, Andy, C.L dan Cheng, T.C.E. 2012. The impact of environmental management systems on financial performance in fashion and textiles industries. *Int. J. Production Economics* 135: 561–567
- Panneerselvam, P., Bala, V.S.S., Thiruvengadaravi, K.V., Nandagopal, J., Palanichamy, M. & Sivanesan, S. 2009. The removal of copper ions from aqueous solution using phosphoric acid modified β -zeolites. *Indian Journal of Science and Technology*. 2(2): 63-66.
- Prasetyo, D., Purnamasari, I., dan Hartanto, D. 2011. Esterifikasi asam lemak stearin kelapa sawit menggunakan katalis H-ZSM-5 mesopori yang disintesis dengan metode nanoprekursor. *Seminar Nasional Zeolit VII*. Surabaya
- Sugiyana, D.; Soenoko, Bambang, H., Marisa dan Noto-darmojo, Suprihanto. 2012. Photocatalytic decolorization of acid red 4 azo dye by using immobilized TiO₂ microparticle and nanoparticle catalysts. *Makara Journal of Science* 16/3: 149-154
- Suwardi. 1998. *Penetapan kualitas mineral zeolit dan prospeknya di bidang pertanian*. Departemen Manajemen Sumber Daya Lahan, Fakultas Pertanian, IPB. Bogor
- Wijaya, K., Sugiharto, E., Fatimah, Is., Sudiono, S., dan Kurniasyih, D. 2006. Utilisasi TiO₂-zeolit dan sinar UV untuk fotodegradasi zat warna Congo Red. *Berkala MIPA*. 16(3): 27-35.