

## PHOTODEGRADATION OF REMAZOL YELLOW USING A-TYPE ZEOLITE/TiO<sub>2</sub>

### Fotodegradasi Remazol Yellow menggunakan Zeolit-A/TiO<sub>2</sub>

Ezra Deborah Tumbel<sup>1</sup>, Audy D. Wuntu<sup>1</sup>, Jemmy Abidjulu<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Chemistry Department, Faculty of Mathematics and Natural Sciences  
Sam Ratulangi University, Manado, North Sulawesi, Indonesia

Received: June 2014 Published: July 2014

#### ABSTRACT

The research aimed to study photodegradation of remazol yellow (RY) using TiO<sub>2</sub>-impregnated A-type zeolite (zeolite-A/TiO<sub>2</sub>) has been conducted. The materials having zeolite/TiO<sub>2</sub> ratio of 1:0.2, 1:0.4, 1:0.6, 1:0.8, 1:1.0, 1:1.2, dan 1:1.4 g/g were used to degrade remazol yellow (RY) under ultraviolet irradiation for 3 hours and percentages of RY degraded were determined using spectrophotometer at 414 nm. Those with zeolite/TiO<sub>2</sub> ratio of 1:0.2, 1:0.8, and 1:1.2 were used to study photodegradation kinetics at time range up to 3 hours. The results showed that the highest amount of RY degraded (82.17%) was attained by the use of material with zeolite/TiO<sub>2</sub> ratio of 1:0.2. This material generated the highest value of rate constant ( $k=0.074 \text{ min}^{-1}$ ), followed by those of 1:1.2 ( $0.045 \text{ min}^{-1}$ ) and 1:0.8 ( $0.025 \text{ min}^{-1}$ ).

**Keywords:** photodegradation, remazol yellow, zeolite-A/TiO<sub>2</sub>.

#### PENDAHULUAN

Zat warna sintetik diaplikasikan pada banyak bidang, seperti pada usaha percetakan, industri makanan, dan industri tekstil. Industri tekstil dan produk tekstil di Indonesia telah berkembang pesat dan seiring dengan itu muncul masalah serius yang dapat membawa dampak buruk pada lingkungan, khususnya masalah limbah cair yang dihasilkan. Limbah zat warna yang dihasilkan dari industri tekstil biasanya merupakan senyawa organik yang sukar terurai di alam sehingga dapat menyebabkan pencemaran lingkungan terutama lingkungan perairan (Wijaya *dkk.*, 2006). Limbah zat warna tekstil menjadi perhatian tersendiri karena adanya struktur aromatik pada zat warna yang sulit terdegradasi dan sebagian besar zat warna dibuat agar mempunyai resistensi terhadap pengaruh lingkungan seperti efek pH, suhu, dan mikroba. Zat warna juga merupakan senyawa organik yang mengandung gugus kromofor terkonjugasi. Zat warna reaktif merupakan zat warna yang banyak digunakan untuk pewarnaan tekstil, contohnya *remazol brilliant orange 3R*, *remazol yellow*, *remazol red*, dan *remazol black B*. Zat-zat warna tersebut sering digunakan untuk proses pewarnaan batik baik dalam skala industri

besar maupun industri rumahan (Nugroho *dkk.*, 2013). *Remazol yellow* (RY) mewakili salah satu zat warna pilihan dalam pewarnaan batik karena memberikan warna yang cerah dan tidak mudah luntur.

Salah satu metode yang relatif murah dan mudah diterapkan untuk mengatasi masalah pencemaran oleh limbah cair yang mengandung pewarna tekstil adalah fotodegradasi. Metode fotodegradasi merupakan metode yang efektif karena diketahui dapat menguraikan senyawa zat warna menjadi senyawa yang tidak berbahaya seperti H<sub>2</sub>O dan CO<sub>2</sub> (Slamet *dkk.*, 2006). Metode fotodegradasi dapat dilakukan dengan menggunakan katalis berupa semikonduktor seperti TiO<sub>2</sub>, ZnO, CdS dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. TiO<sub>2</sub> adalah katalis semikonduktor yang paling efektif karena mempunyai celah energi antara pita valensi dan konduksi relatif besar (3,2 eV) yang cocok digunakan untuk fotokatalis, tidak beracun, harganya terjangkau dan melimpah di alam. Fotokatalisis TiO<sub>2</sub> kurang maksimal jika digunakan dalam keadaan murni karena mempunyai luas permukaan yang relatif rendah sehingga TiO<sub>2</sub> perlu diimbangkan pada suatu adsorben. Adsorben yang biasa digunakan adalah zeolit karena zeolit mempunyai struktur tiga dimensi dengan pori yang besar sehingga dapat

mengadsorpsi senyawa lain yang berukuran lebih kecil (Slamet dkk., 2008).

Pada penelitian sebelumnya telah dilakukan fotodegradasi RY menggunakan fotokatalis Zeolit-A/TiO<sub>2</sub> (Poluakan dkk., 2015) dan hasilnya menunjukkan bahwa kemampuan fotodegradasi Zeolit-A/TiO<sub>2</sub>, dengan perbandingan berat zeolit-A : TiO<sub>2</sub> sebesar 1 : 0,8, tidak jauh berbeda kemampuan TiO<sub>2</sub> sendiri dan dalam artikel ini dikemukakan kajian pengaruh perbandingan berat zeolit-A: TiO<sub>2</sub> pada fotodegradasi RY dan pada laju reaksi fotodegradasi.

## METODOLOGI

### Bahan

Bahan-bahan kimia yang digunakan adalah *remazol yellow* dari Sigma-Aldrich serta SiO<sub>2</sub>, Al(OH)<sub>3</sub>, NaOH, dan TiO<sub>2</sub> (E. Merck).

### Alat

Peralatan utama yang digunakan adalah spektrofotometer visibel Thermo Spectronic GENESYS 20 dan kotak reaktor (60x50x50 cm) dilengkapi dengan 4 buah lampu UV-A (Himawari T8 – 20 W).

### Prosedur Kerja

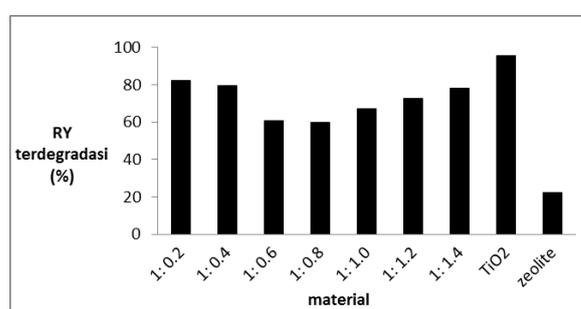
Zeolit-A yang digunakan dalam kajian ini disintesis menurut prosedur yang dikemukakan Wuntu (2002) sedangkan impregnasi TiO<sub>2</sub> pada zeolit-A (material Zeolit-A/TiO<sub>2</sub>) dikerjakan menurut prosedur yang dikemukakan oleh Andari dan Wardhani (2014). Impregnasi dilakukan dengan variasi perbandingan berat zeolit-A : TiO<sub>2</sub>, yaitu 1:0,2; 1:0,4; 1:0,6; 1:0,8; 1:1,0; 1:1,2; dan 1:1,4 g/g. Material yang diperoleh selanjutnya digunakan untuk eksperimen fotodegradasi zat warna RY.

Pada eksperimen fotodegradasi, 0,05 g material dimasukkan dalam 20 mL RY 20 ppm kemudian diletakkan dalam kotak reaktor dan disinari dengan lampu UV selama 3 jam. Setelah penyinaran, campuran disaring dan filtrat yang diperoleh disentrifugasi selama 30 menit. Konsentrasi zat warna yang tersisa dalam larutan kemudian ditentukan secara spektrofotometri pada panjang gelombang 414 nm. Material dengan perbandingan berat yang memiliki kemampuan fotodegradasi paling besar selanjutnya digunakan untuk mendegradasi RY

pada berbagai lama waktu penyinaran ultraviolet. Pengaruh perbandingan berat zeolit-A : TiO<sub>2</sub> pada laju reaksi fotodegradasi dikaji menggunakan material dengan perbandingan berat 1:0,2; 1:0,8; dan 1: 1,2 g/g yang masing-masing diinteraksikan dengan RY pada berbagai waktu interaksi, yaitu 20, 30, 40, 50, 90, 60, 90, 120, dan 180 menit.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Pengaruh variasi perbandingan berat zeolit-A: TiO<sub>2</sub> pada fotodegradasi RY ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Kemampuan fotodegradasi RY oleh material Zeolit-A/TiO<sub>2</sub> pada beberapa perbandingan berat zeolit-A: TiO<sub>2</sub>.

Gambar 1 menunjukkan bahwa material dengan perbandingan berat zeolit-A : TiO<sub>2</sub> sebesar 1:0,2 g/g memiliki kemampuan mendegradasi RY yang paling besar (82,17% RY terdegradasi). Penambahan jumlah TiO<sub>2</sub> dalam material Zeolit-A/TiO<sub>2</sub> menyebabkan terjadinya penurunan jumlah RY yang terdegradasi sampai pada perbandingan 1:0,8 g/g (59,88% RY terdegradasi) sebelum kemudian kembali mengalami kenaikan hingga pada perbandingan 1: 1,4 g/g (78,00% RY terdegradasi).

Zeolit merupakan material yang banyak dipakai sebagai adsorben karena memiliki struktur berpori yang memungkinkan zeolit memiliki luas permukaan besar dan bersama-sama dengan TiO<sub>2</sub> dalam jumlah yang sesuai merupakan material yang mampu mengadsorpsi dan mendegradasi RY dalam jumlah besar. Gambar 1 menunjukkan bahwa terjadi penurunan jumlah RY sebanyak 22,3% pada penggunaan zeolit-A sendiri, tetapi karena zeolit-A bukan material untuk fotodegradasi maka diduga RY

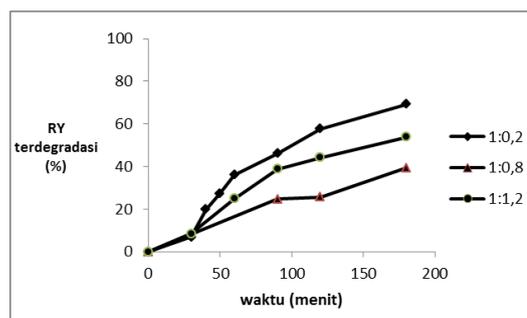
yang berkurang adalah RY yang teradsorpsi pada material ini.

Penurunan kemampuan degradasi RY sampai pada perbandingan berat zeolit-A/TiO<sub>2</sub> 1:0,8 g/g dapat disebabkan karena adanya penurunan luas permukaan spesifik dan volume total pori zeolit yang disebabkan oleh terjadinya penggumpalan yang menutup pori zeolit (Fatimah dkk., 2006; Fatimah dan Wijaya, 2005). Penurunan luas permukaan zeolit mempengaruhi jumlah RY yang teradsorpsi pada permukaan material dan selanjutnya dapat mengurangi jumlah RY yang dapat didegradasi. Penambahan selanjutnya TiO<sub>2</sub> dalam jumlah yang lebih besar dari perbandingan berat 1:0,8 g/g menunjukkan peningkatan kemampuan zeolit-A/TiO untuk mendegradasi RY hingga pada perbandingan 1:1,4 g/g. Pada kasus ini, meskipun kemampuan adsorpsi zeolit-A menjadi berkurang dengan makin banyaknya TiO<sub>2</sub> namun peran TiO<sub>2</sub> untuk fotodegradasi zat warna RY menjadi lebih dominan sehingga jumlah RY terdegradasi kembali meningkat.

Kemampuan fotodegradasi material TiO<sub>2</sub> sendiri (95,55% RY terdegradasi) masih lebih besar dari material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> dengan perbandingan berat 1:0,2. Meskipun demikian, jumlah TiO<sub>2</sub> yang ada dalam material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> tersebut masih jauh lebih sedikit (0.008 g TiO<sub>2</sub> dalam setiap 0.05 g material zeolit-A/TiO<sub>2</sub>) dibandingkan dengan jumlah TiO<sub>2</sub> sendiri (0.05 g). Jika dihitung jumlah RY terdegradasi (mg) untuk setiap gram TiO<sub>2</sub> maka diperoleh angka 7,64 mg/g untuk zeolit sendiri dan 39,44 mg/g untuk material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> dengan perbandingan berat 1:0,2 g/g. Dengan menaikkan jumlah material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> yang diaplikasikan untuk degradasi RY, maka ada kemungkinan jumlah RY yang terdegradasi akan bertambah.

Material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> dengan perbandingan berat 1:0,2; 1:0,8; dan 1:1,2 g/g selanjutnya digunakan untuk melihat pengaruh waktu (Gambar 2) pada fotodegradasi material tersebut. Pada Gambar 2 terlihat bahwa semakin lama waktu penyinaran ultraviolet semakin banyak RY yang mengalami fotodegradasi oleh Zeolit-A/TiO<sub>2</sub>. TiO<sub>2</sub> dalam material tersebut merupakan material semikonduktor dengan pita valensi yang terisi elektron dan pita konduksi yang kosong. Ketika menerima energi radiasi

yang sesuai atau melebihi celah energi antara kedua pita tersebut, dalam hal ini digunakan radiasi ultraviolet, terjadi eksitasi elektron dari pita valensi ke konduksi dan menyebabkan kekosongan elektron (selanjutnya berperan sebagai lubang bermuatan positif) pada pita valensi. Lubang bermuatan positif ini selanjutnya bereaksi dengan H<sub>2</sub>O dan ion OH dalam larutan membentuk radikal hidroksil (OH•) sebagai oksidator kuat yang mengoksidasi zat warna RY. Di sisi lain, elektron yang tereksitasi bereaksi dengan O<sub>2</sub> dalam larutan yang pada akhirnya menghasilkan radikal hidroksil pengoksidasi zat warna RY. Selama TiO<sub>2</sub> masih menerima energi radiasi ultraviolet, pembentukan radikal tersebut terus terjadi sehingga semakin lama waktu penyinaran ultraviolet semakin banyak RY yang mengalami fotodegradasi.

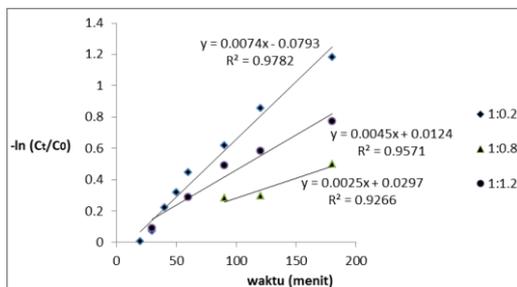


Gambar 2. Persentase RY yang terdegradasi oleh Zeolit-A/TiO<sub>2</sub> sebagai fungsi lama waktu penyinaran ultraviolet.

Pengaruh perbandingan berat zeolit-A : TiO<sub>2</sub> pada laju reaksi fotodegradasi RY oleh material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> ditentukan menggunakan model kinetika laju reaksi order ke-satu melalui plot  $-\ln(C_t/C_0)$  vs.  $t$  di mana  $C_t$  adalah konsentrasi RY tersisa pada waktu  $t$  dan  $C_0$  adalah konsentrasi RY awal (Gambar 3). Konstanta laju,  $k$ , adalah kemiringan kurva linear dan dapat ditentukan dari persamaan garis lurus untuk plot data tersebut.

Pada Gambar 3 terlihat nilai konstanta laju fotodegradasi RY oleh material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> semakin besar mengikuti urutan perbandingan berat zeolit-A:TiO<sub>2</sub> 1:0,8 (0,025 menit<sup>-1</sup>) < 1:1,2 (0,045 menit<sup>-1</sup>) < 1:0,2 (0,074 menit<sup>-1</sup>). Kenaikan nilai konstanta laju ini memiliki urutan yang sama dengan bertambahnya jumlah RY yang mengalami fotodegradasi pada berbagai

perbandingan berat zeolit-A:TiO<sub>2</sub> (Gambar 1). Semakin tinggi laju fotodegradasi maka semakin banyak jumlah RY yang dapat didegradasi oleh zeolit-A/TiO<sub>2</sub>. Fotodegradasi zat warna oleh material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> melibatkan dua tahap utama, yaitu proses adsorpsi zat warna pada permukaan material dan kemudian diikuti dengan proses fotodegradasi. Penggumpalan TiO<sub>2</sub> pada permukaan yang mengakibatkan tertutupnya pori zeolit-A dapat memperlambat molekul zat warna RY untuk mencapai permukaan partikel zeolit-A. Berkurangnya luas permukaan spesifik zeolit juga dapat menyebabkan kompetisi antar molekul zat warna untuk mencapai permukaan zeolit-A.



Gambar 3. Plot  $-\ln(C_t/C_0)$  vs.  $t$  untuk material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> dengan perbandingan berat zeolit-A:TiO<sub>2</sub> sebesar 1:0,2; 1:0,8; dan 1:1,2 g/g.

## KESIMPULAN

Dari hasil kajian ini disimpulkan bahwa perbandingan berat zeolit-A terhadap TiO<sub>2</sub> dalam material zeolit-A/TiO<sub>2</sub> dapat mempengaruhi kemampuan material tersebut untuk mendegradasi zat warna *remazol yellow*. Dari berbagai perbandingan berat zeolit-A terhadap TiO<sub>2</sub> yang diuji, material dengan perbandingan 1:0,2 mendegradasi *remazol yellow* paling banyak dengan konstanta laju fotodegradasi paling besar.

## DAFTAR PUSTAKA

- Andari, D.N., dan S. Wardhani. 2014. Fotokatalis TiO<sub>2</sub> – Zeolit Untuk Degradasi Melen Biru. *Chem.Prog.* 1:9-14.
- Fatimah, I., E. Sugiharto, K. Wijaya, I. Tahir, Kamalia. 2006. Titan Dioksida Terdispersi Pada Zeolit Alam (TiO<sub>2</sub>/Zeolit) dan Aplikasinya untuk Fotodegradasi Congo Red. *Indo. J. Chem.*, 2006, 6 (1), 38 - 42.
- Fatimah, I. dan K. Wijaya. 2005. Sintesis TiO<sub>2</sub>/Zeolit Sebagai Fotokatalis Pada Pengolahan Limbah Cair Industri Tapioka Secara Adsorpsi-Fotodegradasi. *TEKNOIN.* 10(4). 257-267.
- Nugroho, S., A.T. Prasetya, dan S. Wahyuni. 2013. Elektrodegradasi Indigosol Golden Yellow IRK Dalam Limbah Batik Dengan Elektoda Grafit. *Indonesian Journal of Chemical Science.* 3:248-252.
- Poluakan, M., A. Wuntu, M. S. Sangi. 2015. Aktivitas Fotokatalitik TiO<sub>2</sub>-Karbon Aktif dan TiO<sub>2</sub>-Zeolit pada Fotodegradasi Zat Warna Remazol Yellow. *Jurnal MIPA Unsrat Online* 4(2) 137-140.
- Slamet, Ellyana, M., Bismo, S. 2008. *Modifikasi Zeolit Alam Lampung dengan Fotokatalis TiO<sub>2</sub> Melalui Metode Sol Gel dan Aplikasinya untuk Penyisihan Fenol.* Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.
- Wuntu, A.D. 2002. Sintesis dan Karakterisasi Aluminosilikat Serupa Zeolit. *Jurnal Ilmiah Sains.* 2:4-7.