

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Preparasi preparat

Preparat yang digunakan dalam penelitian ini adalah kaca preparat yang terbuat dari silika. Kelebihan menggunakan kaca preparat silika adalah karena silika memiliki kemampuan adsorpsi yang tinggi, memiliki luas permukaan yang tinggi dan bersifat tidak toksik. Sebelum digunakan dalam pembuatan fotokatalis lapis tipis, kaca preparat dikalsinasi terlebih dahulu. Tujuan dari proses kalsinasi adalah menghilangkan pengotor-pengotor organik dan molekul air. Kalsinasi dilakukan dalam suhu 300⁰C selama 2 jam. Kaca preparat yang sudah dikalsinasi didinginkan dalam desikator. Selanjutnya, salah satu sisi preparat ditutup dengan perekat dengan sisi lainnya diletakkan kurang lebih 0,5 cm. Hal ini bertujuan untuk mempermudah dalam proses pencelupan kaca preparat ke dalam pasta TiO₂-Kitosan.

4.2 Sintesis fotokatalis lapis tipis TiO₂-Kitosan

Fotokatalis lapis tipis TiO₂-Kitosan dibuat dengan mencampurkan serbuk TiO₂ dengan gel dari kitosan. Gel kitosan dibuat dari campuran kitosan dan asam asetat 2% yang diaduk selama 30 menit. Kitosan berfungsi sebagai perekat atau absorben agar dapat terbentuk fotokatalis TiO₂-Kitosan, sedangkan fungsi dari asam asetat adalah sebagai pelarut. Molekul kitosan yang terlarut dalam asam asetat akan membentuk *polyelectrolyte* kation yang dapat bereaksi dengan senyawa poli anionic sehingga dapat membentuk agregat [50]. Kitosan yang dicampur dengan asam asetat berwarna bening. Selanjutnya, serbuk TiO₂ dicampurkan ke dalam gel kitosan. Fungsi dari TiO₂ adalah sebagai fotokatalis. Gel kitosan yang dicampur dengan serbuk TiO₂ memiliki warna putih dan sedikit mengental (menjadi pasta).

Pembuatan fotokatalis lapis tipis TiO₂-Kitosan dibuat dengan menggunakan metode *dip-coating*, dimana proses dalam metode *dip coating* ini adalah kaca preparat dicelupkan dalam pasta yang kemudian diangkat secara vertical dengan kecepatan yang konstan. Kelebihan dari metode *dip-coating* ini adalah tidak memerlukan peralatan instrument sehingga mudah untuk diaplikasikan. Fotokatalis

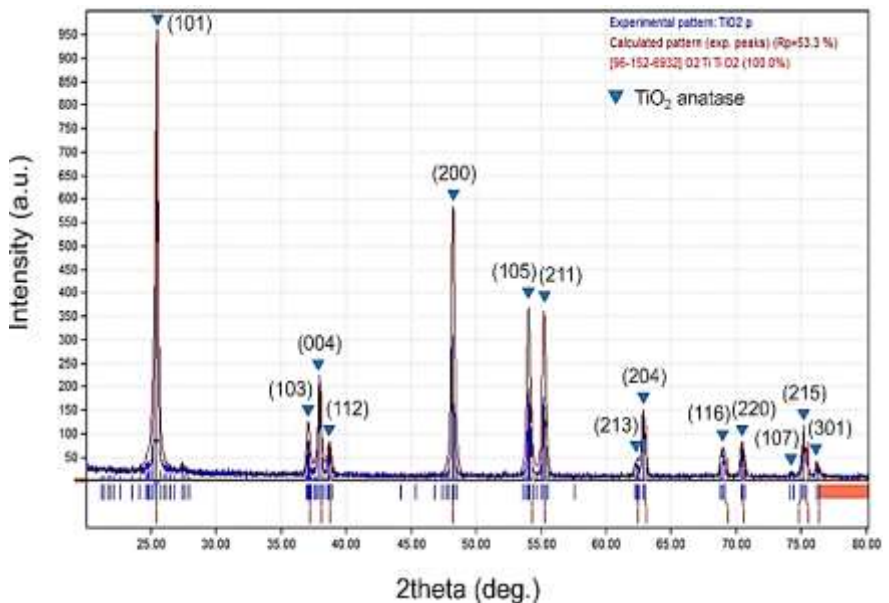
lapis tipis yang sudah terbentuk kemudian dikeringkan dalam oven selama beberapa menit. Fungsi dari pengovenan adalah agar lapis tipis yang terbentuk kering sehingga tidak akan larut dalam senyawa fenol selama proses degradasi berlangsung. Selanjutnya lapis tipis TiO₂-Kitosan yang sudah kering dimasukkan dalam desikator yang berfungsi untuk menghilangkan kadar air yang masih tersisa.

Lapis tipis TiO₂-Kitosan yang diperoleh digunakan dalam uji degradasi senyawa fenol dengan parameter variasi pH fenol, dan lama penyinaran. Sinar yang digunakan adalah sinar UV.

4.3 Karakterisasi fotokatalis TiO₂

4.3.1 Karakterisasi fotokatalis TiO₂ menggunakan XRD (X-Ray Diffraction)

Analisa XRD bertujuan untuk mengetahui derajat kristalinitas dan menentukan bentuk kristal dari suatu sampel [29]. Analisa XRD juga memberikan informasi tentang ukuran kristal, % kristalinitas, kuantifikasi fase dalam sampel, dan penentuan parameter kisi [46].



Gambar 4. 1 Difaktogram TiO₂-Anatase

Tabel 4. 1 Nilai 2θ , jarak kristal dan intensitas TiO_2 dan standar COD TiO_2

COD Standar TiO_2 Anatase			TiO_2		
Pos ($^\circ 2\theta$)	d-spacing (Å)	Int (%)	Pos ($^\circ 2\theta$)	d-spacing (Å)	Int (%)
25,42	3,50	1000,0	25,27	3,52	1000,0
37,21	2,41	63,1	37,77	2,38	231,2
48,22	1,89	269,2	48,05	1,89	428,3
53,34	1,70	164,1	53,89	1,70	265,6
55,29	1,67	161,6	55,06	1,67	242,3

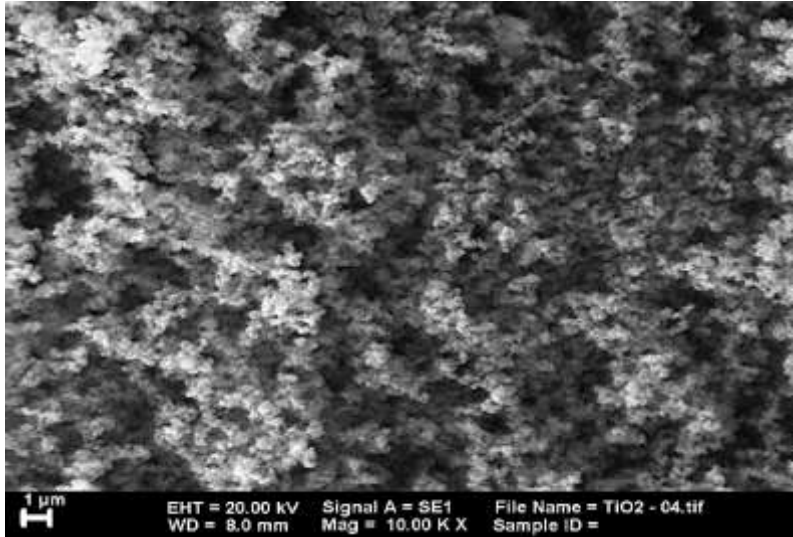
Berdasarkan hasil karakterisasi XRD untuk fotokatalis TiO_2 -Kitosan, menunjukkan bahwa TiO_2 yang digunakan memiliki struktur kristal anatase. Hasil yang diperoleh pada Gambar 4.1 menunjukkan beberapa puncak tertinggi dari analisis yang juga dibandingkan dengan COD standar dari TiO_2 anatase. Berdasarkan COD No. 96-152-6932 menunjukkan adanya kemiripan dari nilai 2 theta, jarak kristal (*d-spacing*) dan nilai intensitas. Dalam grafik XRD tersebut terdapat puncak dengan intensitas tertinggi yang berada dalam sudut $25,27^\circ$ pada 2 theta dengan bidang hkl (101). Berdasarkan penelitian Tao, dkk [50] puncak dengan intensitas tertinggi berada pada sudut $25,25^\circ$ dengan bidang hkl (101).

Pada penelitian ini kristal anatase dari TiO_2 memiliki nilai parameter kisi dengan nilai *a* dan *c* berturut-turut sebesar 3,782 dan 9,502 (Å). Hal ini sesuai dengan standar dari ICSD No. 9853 yang menyebutkan nilai parameter kisi dengan nilai *a* dan *c* berturut-turut sebesar 3,782 dan 9,5139 (Å).

4.3.2 Karakterisasi fotokatalis TiO_2 -Kitosan menggunakan SEM (Scanning Electron Microscopy)

Karakterisasi SEM (*Scanning Electron Microscopy*) berfungsi untuk mengkarakterisasi dan mengamati material organik heterogen dan anorganik pada skala nanometer (nm) sampai skala mikrometer [47]. Karakterisasi SEM juga bertujuan untuk melihat struktur dari permukaan suatu padatan [51]. Berdasarkan Gambar 4.2 menunjukkan

karakterisasi menggunakan SEM pada serbuk TiO₂. Dari hasil SEM yang diperoleh pada perbesaran 10.000 kali menunjukkan struktur permukaan TiO₂ terlihat seperti partikel-partikel yang sedikit berongga. Partikel penyusun dari TiO₂ memiliki nilai diameter rata-rata antara 5-8 nm.

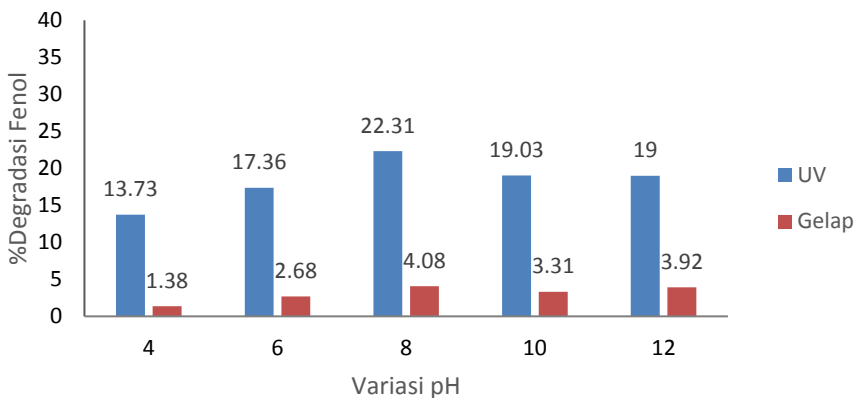


Gambar 4. 2 Morfologi permukaan TiO₂ perbesaran 10.000x

4.4 Pengaruh pH terhadap Presentase Degradasi Fenol

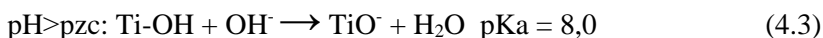
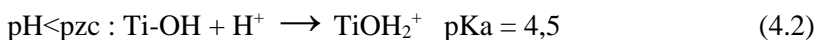
Parameter ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh variasi pH terhadap presentase degradasi fenol dan juga terjadinya proses adsorpsi. Parameter pH penting dalam reaksi fotokatalitik pada permukaan partikel. pH memiliki peranan penting dalam menghasilkan radikal hidroksil pada proses fotodegradasi [41]. Radikal adalah oksidator kuat yang dapat menguraikan fenol dengan cepat. Proses fotokatalisis terjadi saat berlangsung transfer muatan radikal OH ke dalam fenol. Hal ini berdasarkan pada reaksi (4.1) : [52].





Gambar 4. 3 Kurva hubungan variasi pH terhadap persen degradasi fenol 100 mg/L dengan fotokatalis TiO₂-Kitosan.

Hasil yang didapatkan dari presentase degradasi fenol 100 mg/L pada variasi pH 4, 6, 8, 10, dan 12 terdapat pada Gambar 4.3 yang menunjukkan bahwa persen degradasi fenol terbesar ditunjukkan pada pH 8. pH optimum yang diperoleh adalah pada keadaan basa. Dalam keadaan basa fotokatalis TiO₂ bermuatan negatif dan fenol bermuatan positif, sehingga terjadi reaksi tarik menarik yang cenderung disukai, hal ini sesuai dengan persamaan reaksi (4.3) : [39, 52]



Pada pH 8 fotokatalis bekerja secara optimum dalam menangkap energi yang sesuai sehingga proses fotokatalitik menjadi optimum, selain itu TiOH stabil pada pH 8 [52], sedangkan untuk pH 10 dan pH 12 kemampuan fotokatalis dalam menyerap energi yang sesuai mengalami penurunan, dan senyawa fenol akan bermuatan negatif pada pH 10 dan 12 sehingga terjadi reaksi tolak-menolak, karena semakin tinggi pH maka fenol akan bermuatan negatif. Hal ini sesuai dengan persamaan reaksi (4.4): [13].



Pada pH basa TiO_2 anatase telah mengalami perubahan menjadi $\text{Ti}(\text{OH})_4$ yang tidak lagi memiliki sifat semikonduktor. Semakin tinggi nilai pH maka akan semakin banyak fenol yang terdegradasi karena pada pH basa fenol akan membentuk ion fenoksida, dimana ion ini lebih mudah terdegradasi sehingga fenol akan terlarut dalam susasana basa [54, 56].

Pada Gambar 4.3 menunjukkan hasil pH asam dalam kondisi penyinaran sinar UV untuk pH 4, dan pH 6 berturut-turut persen degradasi fenol sebesar 13,74 dan 17,36%. Sedangkan pada pH basa yaitu pH 8, pH 10 dan pH 12 persen degradasi fenol diperoleh berturut-turut sebesar 22,31 ; 19,03 dan 19%.

Parameter pH mempengaruhi pembentukan radikal OH. Pada pH asam pembentukan radikal OH lebih sedikit jika dibandingkan pada pH basa. Hal ini disebabkan karena lambatnya pembentukan elektron-hole [53]. TiO_2 memiliki nilai pH_{pzc} sebesar 6,25 yang mengakibatkan TiO_2 akan bermuatan positif [17]. Senyawa fenol bermuatan positif dalam keadaan basa, sehingga jika bereaksi dengan TiO_2 yang bermuatan positif dalam keadaan asam akan terjadi reaksi tolak menolak yang mengakibatkan pH optimum tidak dalam keadaan asam [55]. Berdasarkan hasil uji statistik untuk parameter pH (Lampiran D.1) menunjukkan bahwa $F_{\text{hitung}} > F_{\text{tabel}}$ ($23,25 > 5,19$), H_0 tidak diterima dan variasi pH berbeda nyata pada penyinaran sinar UV artinya bahwa parameter pH berpengaruh terhadap penurunan konsentrasi fenol yang dipastikan dengan uji BNT (2,35).

Berdasarkan Gambar 4.3 diperoleh informasi bahwa persen degradasi fenol yang dihasilkan dalam keadaan gelap relatif kecil. Pada kondisi asam untuk pH 4 dan pH 6 diperoleh persen degradasi sebesar 1,38 dan 2,68%. Sedangkan untuk pH basa pada pH 8, pH 10 dan pH 12 diperoleh persen degradasi berturut-turut sebesar 4,08 ; 3,31 dan 3,92%. Hasil yang diperoleh relatif kecil dikarenakan dalam kondisi gelap tidak ada energi foton yang dapat mengaktifkan permukaan dari fotokatalis TiO_2 -Kitosan. Hal ini sesuai dengan data uji statistik (Lampiran D.2) yang menunjukkan bahwa $F_{\text{hitung}} < F_{\text{tabel}}$ ($4,68 < 5,19$) H_0 diterima dan variasi pH tidak berbeda nyata pada keadaan gelap.

Gambar 4.3 menunjukkan adanya perbedaan antara persen degradasi fenol yang disinari dengan sinar UV dan dalam keadaan

gelap. Pada kondisi gelap proses yang terjadi hanya proses adsorpsi biasa [57], karena dalam keadaan gelap tidak ada energi foton yang dapat mengaktifkan sisi aktif dari fotokatalis TiO_2 -Kitosan sehingga tidak ada radikal hidroksil yang terbentuk. Hal ini menyebabkan fenol yang terdegradasi juga memiliki nilai yang kecil.

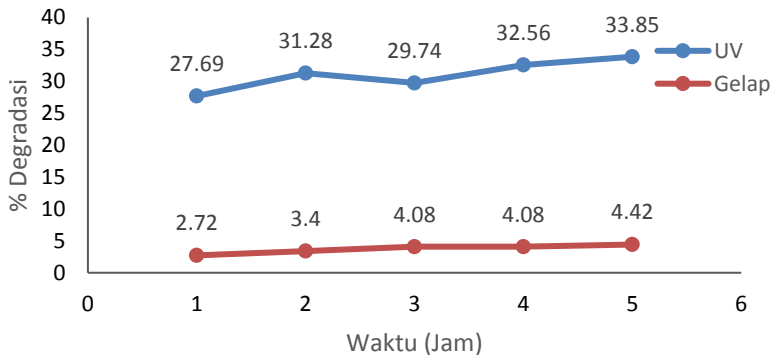
Menurut penelitian [54], tentang degradasi senyawa fenol pada larutan artifisial menggunakan fotokatalis TiO_2 diperoleh degradasi fenol dalam suasana basa, dan pH optimum yang didapat adalah pada pH 11, karena pada pH basa TiO_2 mengalami perubahan menjadi $\text{Ti}(\text{OH})_4$. Sedangkan menurut penelitian Permata [6], pH optimum yang diperoleh dalam degradasi senyawa fenol menggunakan fotokatalis ZnO adalah pH 8, karena fotokatalis ZnO bermuatan negatif pada pH basa, dan fenol yang bermuatan positif lebih mudah teradsorpsi pada permukaan ZnO . Pada degradasi zat warna indigo carmine menggunakan fotokatalis TiO_2 , pH optimum yang diperoleh adalah pada pH asam yaitu pH 2. Senyawa *indigo carmine* merupakan zat warna yang bersifat asam, sehingga pada pH asam *indigo carmine* menyerap kuat pada permukaan TiO_2 [58].

4.5 Pengaruh Lama Penyinaran terhadap Presentase Degradasi Fenol

Pada penelitian ini dipelajari tentang pengaruh lama penyinaran terhadap proses degradasi senyawa fenol. Variasi waktu yang digunakan adalah 1, 2, 3, 4, dan 5 jam. Uji aktivitas fotokatalik dilakukan pada 2 kondisi yaitu kondisi gelap dan sinar UV.

Berdasarkan Gambar 4.4 lamanya waktu penyinaran berbanding lurus dengan persen degradasi fenol. Pada kondisi penyinaran dengan sinar UV terjadi degradasi senyawa fenol pada waktu 1 dan 2 jam dengan nilai persen degradasi berturut-turut sebesar 27,69 dan 31,28%, namun terjadi penurunan pada jam ke-3 yaitu sebesar 29,74%. Hal ini disebabkan karena terjadinya reaksi terminasi yaitu turunnya jumlah radikal bebas sehingga mempengaruhi proses degradasi [57]. Sedangkan pada jam ke-4 dan jam ke-5 terjadi kenaikan kembali yaitu sebesar 32,56 dan 33,85%. Berbeda dengan kondisi gelap yang menunjukkan degradasi senyawa fenol sangat kecil. Pada jam ke 1-2 jam terjadi peningkatan persen degradasi senyawa fenol yaitu sebesar 2,72 dan 3,40%. Sedangkan pada jam ke-3 dan jam ke-4 persen degradasi cenderung konstan yaitu sebesar

4,08% dan mengalami peningkatan kembali pada jam ke-5 dengan nilai persen degradasi sebesar 4.42%. Berdasarkan hasil uji statistik diperoleh nilai $F_{hitung} < F_{tabel}$ maka H_0 diterima sehingga tidak ada perbedaan nyata dalam perlakuan lama penyinaran.



Gambar 4. 4 Kurva hubungan lama penyinaran terhadap persen degradasi fenol 100 mg/L pH 8 dengan fotokatalis TiO_2 -Kitosan.

Variasi lama penyinaran berbanding lurus dengan persen degradasi senyawa fenol. Persen degradasi terbesar ditunjukkan pada jam ke-5 baik dalam penyinaran sinar UV maupun dalam kondisi gelap. Hal ini sesuai dengan teori dimana semakin lama waktu penyinaran maka persen degradasi senyawa fenol juga akan semakin meningkat karena semakin banyak radikal hidroksil yang terbentuk. Lama penyinaran pada proses fotodegradasi merupakan lamanya interaksi antara fotokatalis dengan sinar dalam menghasilkan radikal hidroksil, dan interaksi antara radikal hidroksil dengan substrat senyawa organik. Radikal hidroksil merupakan oksidator kuat yang digunakan dalam mendegradasi senyawa fenol, semakin banyak radikal hidroksil yang terbentuk maka semakin besar persen degradasi yang dihasilkan [44].

Berdasarkan Gambar 4.4 terlihat adanya perbedaan antara persen degradasi fenol yang disinari dengan sinar UV dan dalam keadaan gelap. Reaksi fotokatalis terjadi karena penyinaran radiasi

elektromagnetik (sinar UV) pada permukaan fotokatalis yang menyebabkan fotokatalis teraktivasi. Apabila fotokatalis semikonduktor teraktivasi oleh energi foton, maka akan memiliki kemampuan dalam membentuk radikal hidroksil yang dapat mendegradasi senyawa organik. Dalam hal ini proses degradasi hanya dapat terjadi dibawah efek cahaya, sehingga menyebabkan pada pengujian dengan sinar UV persen degradasi fenol lebih tinggi jika dibandingkan dengan tanpa penyinaran sinar UV [57].

Menurut penelitian Andari [53] mengenai degradasi senyawa metilen biru dengan fotokatalis TiO_2 -Zeolit diperoleh semakin lama waktu penyinaran maka persen degradasi yang didapat juga semakin besar. Sedangkan menurut Permata, dkk [6] presentase degradasi fenol akan meningkat seiring dengan lama penyinaran. Sehingga dapat diketahui bahwa lama penyinaran berbanding lurus dengan degradasi substrat.