

## PENGOLAHAN LIMBAH METHYLEN BLUE SECARA FOTOKATALISIS TiO<sub>2</sub> DENGAN PENAMBAHAN Fe DAN ZEOLIT

Agus Salim Afrozi, Rahmat Salam, Auring R, Asep Nana S  
Pusat Sains dan Teknologi Bahan Maju – BATAN  
Kawasan Puspiptek Serpong – Tangerang Selatan  
Email: agussal@batan.go.id

### ABSTRAK

**PENGOLAHAN LIMBAH METHYLEN BLUE SECARA FOTOKATALISIS TiO<sub>2</sub> DENGAN PENAMBAHAN Fe DAN ZEOLIT.** Tujuan penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh penambahan Fe dan zeolit terhadap aktivitas fotokatalis TiO<sub>2</sub> dalam pengolahan limbah methylen blue. TiO<sub>2</sub> yang digunakan adalah TiO<sub>2</sub> teknis, prekursor Fe adalah Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O, zeolit yang digunakan adalah zeolit Bayah. Penambahan dopan Fe dilakukan dengan cara impregnasi. Komposisi Fe dalam katalis adalah 3% berat TiO<sub>2</sub>, penambahan zeolit dilakukan dengan variasi perbandingan berat TiO<sub>2</sub> dan zeolit 1:1, 1:2 dan 1:3 menggunakan metode impregnasi. Hasil karakterisasi Difraktometer X-Ray menunjukkan penambahan Fe dan zeolit pada TiO<sub>2</sub> tidak mempengaruhi ukuran kristal yaitu dalam kisaran 20 s/d 40 nm. Hasil karakterisasi SEM-EDS terlihat bahwa penambahan dopan Fe dan zeolit tertinggi diperoleh pada penambahan zeolit dengan perbandingan berat TiO<sub>2</sub> dan zeolit 1:3. Hasil karakterisasi BET menunjukkan luas permukaan TiO<sub>2</sub> mengalami kenaikan yang cukup tinggi dengan penambahan Fe dan zeolit. Hasil pengujian menunjukkan penambahan Fe dan zeolit meningkatkan aktivitas fotokatalis TiO<sub>2</sub> dalam mendegradasi methylen blue dari konstanta laju reaksi TiO<sub>2</sub> 0,160 jam<sup>-1</sup> menjadi 0,524 jam<sup>-1</sup> untuk penambahan zeolit 1:1, menjadi 0,632 jam<sup>-1</sup> untuk penambahan zeolit 1:2 dan menjadi 0,495 jam<sup>-1</sup> untuk penambahan zeolit 1:3. Peningkatan tertinggi diperoleh pada penambahan zeolit 1:2.

Kata Kunci : fotokatalis; methylen blue; TiO<sub>2</sub>, Fe/TiO<sub>2</sub>-Zeolit.

### ABSTRACT

**METHYLEN BLUE WASTE TREATMENT BY TiO<sub>2</sub> PHOTOCATALYTIC ADDED WITH WITH Fe AND ZEOLIT.** The purpose of this study was to observe the effect of zeolite on the activity of Fe and TiO<sub>2</sub> photocatalyst in methylene blue waste treatment. TiO<sub>2</sub> used was a technical TiO<sub>2</sub>, Fe precursor is Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O zeolite used is zeolite bayah. The addition of dopants Fe is done by means of impregnation. Fe in the catalyst composition is 3 wt% TiO<sub>2</sub>, adding zeolite was done by varying the weight ratio of TiO<sub>2</sub> and zeolite 1: 1, 1: 2 and 1: 3 using impregnation method. The results of X-ray diffraction characterization showed the addition of Fe and TiO<sub>2</sub> zeolite does not affect the crystal size is in the range of 20 to 40 nm. SEM-EDS characterization results shown that the addition of dopants Fe and zeolite highest obtained in addition to weight ratio TiO<sub>2</sub> and zeolite 1: 3. Result of characterization BET surface area of TiO<sub>2</sub> show experienced a high increase with the addition of Fe and zeolite. The test results showed the addition of Fe and the zeolite increases the activity of photocatalytic TiO<sub>2</sub> in degrading methylene blue on the reaction rate constant TiO<sub>2</sub> 0.160 h<sup>-1</sup> to 0.524 h<sup>-1</sup> for the addition of zeolite 1: 1, being 0.632 h<sup>-1</sup> for the addition of zeolite 1: 2 and became 0.495 h<sup>-1</sup> for the addition of zeolite 1: 3. The highest increase was obtained on the addition of zeolite 1: 2.

Keywords : Photocatalyst ; methylene blue; TiO<sub>2</sub>, Fe/TiO<sub>2</sub>-Zeolit

### PENDAHULUAN

Limbah merupakan produk samping dari proses industri. Limbah cair yang dikeluarkan oleh industri tekstil mengandung berbagai zat pewarna yang berbahaya bagi lingkungan, misalnya golongan azo di mana zat warna tersebut memiliki sifat *non-biodegradable* [1]. Disamping menimbulkan bau tak sedap, perombakan zat warna secara anaerob pada dasar perairan menghasilkan senyawa amina aromatik yang lebih toksik dibandingkan dengan zat warna semula [2]. Oleh karena itu, usaha untuk mengatasi masalah tersebut harus dilakukan sedini mungkin.

Metode-metode penanggulangan limbah yang sering dilakukan adalah metode adsorpsi, biodegradasi, serta metode kimia seperti klorinasi

dan ozonisasi. Metode-metode tersebut cukup efektif dalam menanggulangi limbah namun memerlukan biaya operasional yang sangat besar. Masih banyak juga metode-metode lain yang biasa digunakan, seperti koagulasi kombinasi, oksidasi elektrokimia, flokulasi, osmosis balik, dan adsorpsi menggunakan karbon aktif. Namun, metode-metode tersebut juga memiliki banyak kelemahan yaitu munculnya masalah baru seperti dihasilkannya fasa baru yang mengandung polutan yang lebih terkonsentrasi [3].

Metode fotokatalisis dengan menggunakan TiO<sub>2</sub> memiliki banyak kelebihan diantaranya adalah mudah didapat, harga relatif murah, tidak berbahaya, dan stabil secara kimia [4]. Salah satu kelemahan TiO<sub>2</sub> adalah hanya aktif pada rentang sinar uv untuk menginisiasi proses fotokatalitik. Berbagai upaya untuk

meningkatkan aktivitas fotokatalitik  $\text{TiO}_2$  dan menggeser daerah kerja  $\text{TiO}_2$  telah banyak dilakukan, diantaranya dengan penambahan dopan logam maupun non logam.

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan Andarini [5] dan Ramadhana [6] aktivitas fotokatalis  $\text{TiO}_2$  juga dapat ditingkatkan melalui pengembanan pada material pendukung, seperti adsorben. Salah satu adsorben yang dapat digunakan adalah zeolit alam yang mempunyai pori dan luas permukaan yang relatif besar [7]. Sementara itu, Indonesia merupakan negara dengan sumber daya alam mineral zeolit yang melimpah. Namun, mineral zeolit tersebut belum dimanfaatkan secara optimal [8].

Tujuan penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh penambahan Fe dan zeolit terhadap aktivitas fotokatalis  $\text{TiO}_2$  dalam pengolahan limbah *methylen blue*. Aktivitas tersebut ditunjukkan oleh besaran konstanta laju reaksi dari proses degradasi limbah *methylen blue*.

## METODOLOGI

### Bahan dan Peralatan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah  $\text{TiO}_2$  teknis, larutan prekursor untuk Fe adalah  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , *aquades*, serbuk *methylen blue*, zeolit dari Bayah Kabupaten Lebak Propinsi Banten yang telah diaktifkan. Alat yang digunakan dalam penelitian ini yaitu gelas beker, gelas ukur, spatula, pipet tetes, pipet ukur, labu ukur batang pengaduk, cawan porselen, pH indikator, *furnace*, *X-Ray Diffractometer* (XRD) merek Shimadzu untuk menganalisis struktur dan ukuran kristal serta fraksi *rutile-anatase*, *Scanning Electron Microscope/Energi Dispersive Spectroscope* (SEM/EDS) merek JEOL type JSM 6510 L untuk menganalisis foto permukaan (butir), BET (BRUNAEUR-EMMET-TELLER) merk QUANTACHROME INSTRUMENTS untuk menganalisa luas permukaan, Spektrofotometri UV-Vis merek PERKIN ELMER type Lambda 25 untuk menganalisa konsentrasi *methylen blue* dalam limbah.

### Pembuatan fotokatalis Fe/ $\text{TiO}_2$

Pembuatan Fe- $\text{TiO}_2$  dilakukan dengan menggunakan metode impregnasi yaitu dengan cara mencampurkan  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{TiO}_2$  dengan perbandingan berat  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  3% dari berat  $\text{TiO}_2$ , kemudian ditambahkan *aquades* 100 ml. Larutan diaduk dengan *stirrer* selama 30 menit pada temperatur ruang. Selanjutnya diaduk sambil dipanaskan pada suhu  $80^\circ\text{C} - 90^\circ\text{C}$  untuk

menguapkan airnya sampai kering kurang lebih selama 3 jam. Larutan yang telah kering kemudian dikalsinasi pada suhu  $400^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Hasil yang diperoleh kemudian digerus sampai halus.

### Pembuatan fotokatalis Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit

Pembuatan Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit dilakukan dengan memvariasi penambahan zeolit pada Fe/ $\text{TiO}_2$  dengan perbandingan berat Fe/ $\text{TiO}_2$  dan zeolit 1:1, 1:2 dan 1:3 yaitu mencampurkan 5 gram Fe/ $\text{TiO}_2$  dan zeolit sebanyak 5, 10 dan 15 gr. Ditambahkan *aquades* sebanyak 100 ml dan diaduk dengan *stirrer* selama 30 menit, kemudian dipanaskan pada suhu  $90^\circ\text{C}$  sambil diaduk sampai kering. Hasil yang diperoleh kemudian digerus sampai halus.

### Limbah Simulasi

Larutan limbah simulasi dibuat dengan kandungan *methylen blue* 10 ppm, dengan cara serbuk *methylen blue* sebanyak 0,3 g ditambahkan ke dalam 300 ml *aquades* kemudian diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 10 menit.

### Aktivitas Fotokatalitik

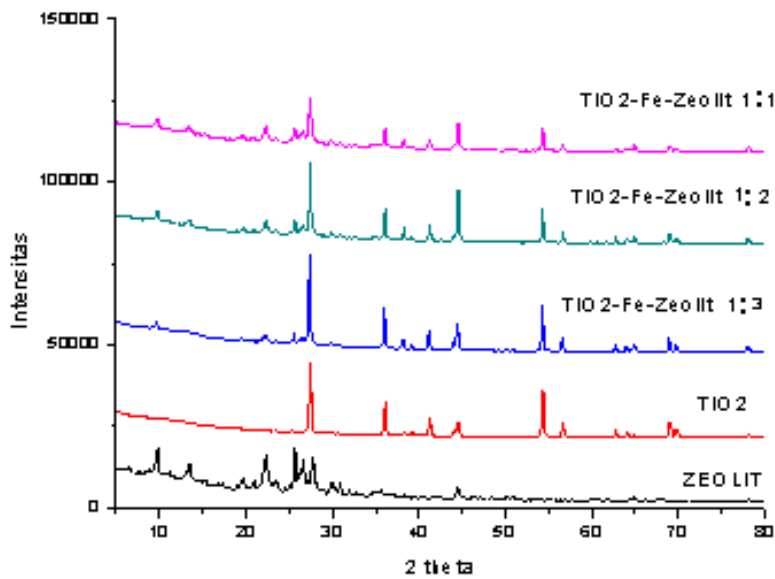
Lampu *Phillips UV-A 10 W* sebanyak 3 buah digunakan sebagai sumber foton. Reaksi fotokatalitik dilakukan dalam gelas reaksi dengan kapasitas 650 ml. Sejumlah 0,3 gram katalis ditambahkan ke dalam 300 ml larutan *methylen blue* 10 ppm, diaduk dengan *stirrer* sambil disinari dengan UV selama 5 jam. Setiap 1 jam dilakukan pencuplikan sampel untuk mengukur kadar *methylen blue* yang terurai dalam larutan dengan menggunakan peralatan spektrometri UV-Vis.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Karakterisasi Fotokatalis

Gambar 1 memperlihatkan puncak difraksi  $\text{TiO}_2$  dengan pola difraksi dari fase *rutile* terlihat pada  $2\theta = 27,49^\circ; 36,1^\circ; 41,2^\circ; 44,1^\circ; 54,3^\circ; 56,6^\circ; 69^\circ$ , sedangkan fase *anatase* terlihat pada puncak  $2\theta = 25,3^\circ$ . Perbandingan fase yang terbentuk *rutile* 91,38% sedangkan fase *anatase* yang terbentuk 8,62%.

Pola difraksi dari zeolit muncul pada  $2\theta = 9,6^\circ; 12,4^\circ; 25,6^\circ; 29,7^\circ; 32,1^\circ; 39,1^\circ; 55,1^\circ; 62,7^\circ$ . Peak ini juga terlihat pada Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit dengan semua variasi penambahan zeolit dengan intensitas yang tidak terlalu besar. Dari pola difraksi ini terlihat terdapat 2 fase yaitu fase Fe/ $\text{TiO}_2$  dan zeolit.



**Gambar 1.** Hasil karakterisasi XRD dari zeolit, TiO<sub>2</sub> dan Fe/TiO<sub>2</sub>-zeolit

Dari hasil XRD di atas ukuran kristal dapat ditentukan dari persamaan Scherrer [9]:

$$L = \frac{0.9\lambda}{(\beta \cos \theta)}$$

dengan:

- L = ukuran kristal
- $\lambda$  = panjang gelombang radiasi sinar X-ray yang digunakan
- $\beta$  = lebar dari setengah puncak gelombang tertinggi
- $\theta$  = sudut puncak

Sedangkan persentase fasa *rutile* pada sampel dapat diestimasi dari intensitas peak hasil XRD dengan persamaan [10]:

$$X = \left( 1 + \frac{0.8I_A}{I_R} \right)^{-1}$$

dengan:

- X = fraksi berat *rutile* dalam serbuk katalis
- I<sub>A</sub> dan I<sub>R</sub> = intensitas X-ray dari puncak *anatase* dan *rutile* (a.u.)

Dengan rumus di atas, diperoleh besar ukuran kristal dan fraksi *rutile* sebagai berikut (Tabel 1).

**Tabel 1.** Ukuran kristal dan fraksi *rutile* dari katalis Fe/TiO<sub>2</sub>-zeolit hasil analisa XRD

No	Sampel	2θ (Rutile)	L (nm)	Fraksi Rutile (%)
1.	TiO <sub>2</sub>	27,49	24,04	91,39
2.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:1)	27,36	38,02	84,92
3.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:2)	27,44	38,92	78,93
4.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:3)	27,41	27,24	71,10

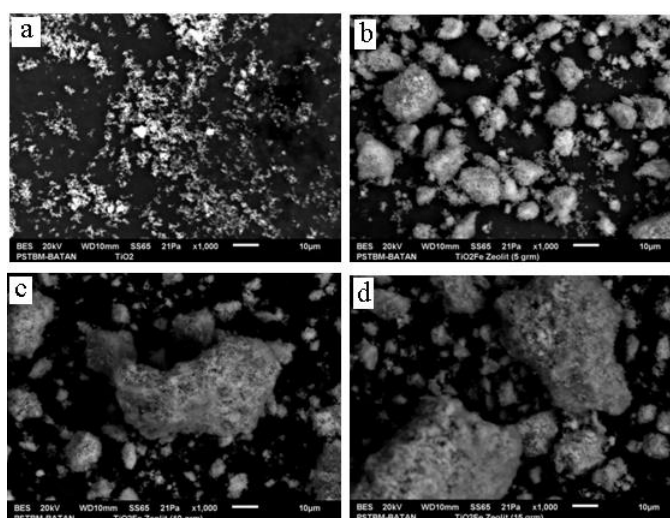
Terlihat bahwa penambahan Fe dan zeolit menyebabkan sedikit pergeseran pada puncak *rutile* dan menyebabkan terjadinya penurunan fraksi *rutile* sebanding dengan

konsentrasi penambahan zeolit. Penurunan terbesar terjadi pada penambahan zeolit 1:3 yaitu menurunkan fraksi *rutile* dari 91,38% pada TiO<sub>2</sub> murni menjadi 71,10%. Perbedaan dari kedua

struktur ini terletak pada distorsi struktur oktahedronnya. Pada rutil, struktur oktahedronnya sedikit distorsi orthorombik. Sementara pada anatase, distorsi jauh lebih besar, sehingga strukturnya asimetris dibandingkan orthorombik [11]. Diduga dengan adanya dopan Fe dan zeolit menyebabkan terjadinya distorsi yang cukup besar pada struktur oktahedron fase rutil sehingga sebagian fase rutil berubah menjadi fase anatase dan menurunkan fraksi rutil dari  $TiO_2$ , semakin besar penambahan Fe dan zeolit menyebabkan makin besar penurunan fraksi rutil.

Ukuran kristal dari  $TiO_2$  dan Fe/ $TiO_2$ -zeolit berkisar dari 20 s/d 40 nm. Ukuran kristal  $TiO_2$  adalah 24,04 nm. Setelah didoping dengan Fe dan zeolit sampai perbandingan 1:2 mengalami peningkatan ukuran menjadi 38,92 nm. Namun kemudian mengalami penurunan ukuran ketika zeolit yang ditambahkan 1:3 menjadi 27,24 nm. Secara umum perubahan ukuran ini tidak terlalu besar.

Hasil karakterisasi SEM-EDS dapat dilihat pada Gambar 2.



**Gambar 2.** Hasil SEM Perbesaran 1000 x: (a) $TiO_2$ , (b) Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:1), (c) Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:2), (d) Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:3)

Dari gambar 2b, 2c dan 2d terlihat butir  $TiO_2$  menempel pada sebagian permukaan dari zeolit. Ukuran butir dari  $TiO_2$  relatif kecil yaitu < 10µm dan relative seragam, batas antar butir terlihat cukup jelas. Ukuran butir dari Fe/ $TiO_2$ -zeolit 1:1 cukup bervariasi yaitu sekitar 10µm dengan batas antar butir yang cukup jelas namun terjadi beberapa penggumpalan. Pada Fe/ $TiO_2$ -zeolit 1:2 ukuran butir dari  $TiO_2$  tidak seragam dan berukuran relatif besar yaitu 10µm s/d 20 µm, batas antar butir yang cukup jelas namun terjadi beberapa penggumpalan. Penyebaran butir kurang merata dengan ukuran yang terlihat berbeda. Diduga hal ini disebabkan proses

penggerusan yang dilakukan terhadap sampel kurang sempurna.

Pada Fe/ $TiO_2$ -zeolit 1:3 ukuran butir dari  $TiO_2$  relatif besar dan tidak merata, batas antar butir yang cukup jelas namun terjadi beberapa penggumpalan. Dilihat dari kinerja katalis  $TiO_2$ , ukuran butir yang kecil akan menguntungkan karena dapat meningkatkan jumlah luasan kontak antara katalis dengan reaktan sehingga menaikkan kinerjanya, sebaliknya ukuran yang besar akan menurunkan luasan kontak antara katalis dan bahan limbah

Dari hasil EDS diperoleh informasi sebagaimana dalam tabel berikut:

**Tabel 2.** Konsentrasi kandungan atom Fe dalam katalis  $TiO_2$

No	Bahan	Kandungan Fe (%)
1.	Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:1)	0,68
2.	Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:2)	1,03
3.	Fe/ $TiO_2$ -zeolit (1:3)	1,30

Terlihat dari Tabel 2 bahwa kandungan Fe dalam Fe/TiO<sub>2</sub>-zeolit mengalami kenaikan dengan kenaikan prosentase zeolit yang ditambahkan. Hal ini diduga karena adanya

sumbangan dari Fe yang terkandung dalam zeolit.

Dari hasil uji Surface Area / BET diperoleh hasil sebagaimana dalam tabel berikut:

**Tabel 3.** Luas permukaan dari katalis TiO<sub>2</sub> dan Fe/TiO<sub>2</sub>-zeolit

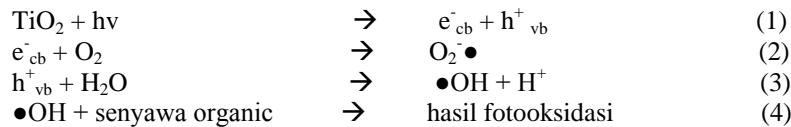
No	Bahan	Luas Permukaan (m <sup>2</sup> /g)	Kenaikan Luas Permukaan (%)
1.	TiO <sub>2</sub>	9,492	-
2.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:1)	29,216	307,8
3.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:2)	30,149	317,6
4.	Fe/TiO <sub>2</sub> -zeolit (1:3)	26,790	282,2

Diperoleh bahwa luas permukaan fotokatalis mengalami peningkatan dengan penambahan Fe dan zeolit. Hal ini disebabkan zeolit memiliki pori yang sangat banyak dan memiliki luas permukaan yang cukup besar, sehingga menyebabkan peningkatan luas permukaan dari TiO<sub>2</sub>. Peningkatan tertinggi terjadi pada penambahan zeolit 1:2 dengan kenaikan mencapai 317,6% dibanding luas permukaan TiO<sub>2</sub>. Pada penambahan zeolit 1:3, luas permukaan menurun kembali menjadi 282,2% dibanding luas permukaan TiO<sub>2</sub>. Penurunan ini diduga karena Fe/TiO<sub>2</sub> masuk ke dalam pori zeolit sehingga menyebabkan berkurangnya luas permukaan fotokatalis.

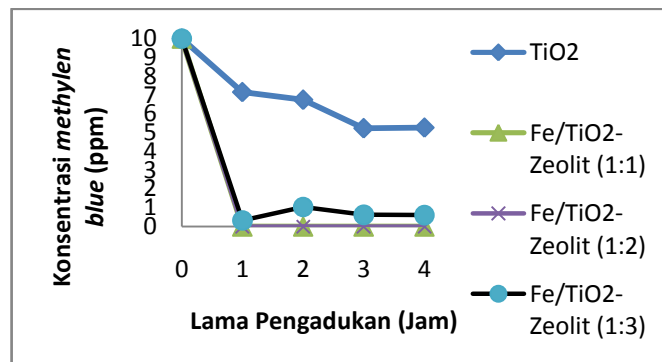
### Uji Aktivitas

Limbah *methylen blue* awal mengandung konsentrasi sebesar 10 ppm. Uji reduksi katalis terhadap *methylen blue* dilakukan selama 5 jam dengan kondisi distirer dan disinari UV. Reaksi yang terjadi pada penambahan fotokatalis adalah adanya TiO<sub>2</sub>-zeolit yang disinari UV, menyebabkan elektron (e<sup>-</sup>) tereksitasi dari pita valensi ke pita konduksi, meninggalkan *hole* (h<sup>+</sup>) pita valensi yang berinteraksi dengan air membentuk •OH, sedangkan elektron akan mengabsorpsi molekul O<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O menghasilkan O<sub>2</sub>• dan •OH [12].

•OH menguraikan senyawa organik, yang terjadi pada permukaan TiO<sub>2</sub> reaksi 1-4 [13]:



Hasil penurunan konsentrasi *methylen blue* dalam limbah ditunjukkan oleh Gambar 3 sebagai berikut.



**Gambar 3.** Pengaruh waktu pengadukan terhadap konsentrasi *methylen blue*

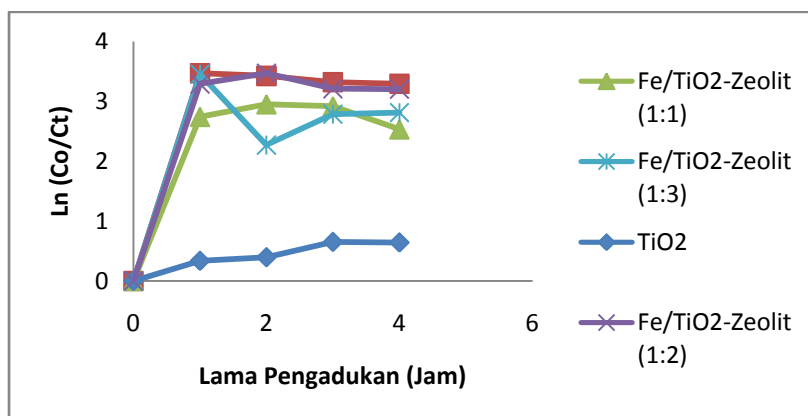
Pada 1 jam pertama terlihat penurunan konsentrasi limbah yang cukup tajam pada

penambahan Fe/TiO<sub>2</sub>-zeolit 5%, 10% dan 15% dari 10 ppm menjadi kurang dari 1 ppm,

sedangkan hal ini tidak terlihat pada penambahan  $\text{TiO}_2$ . Hal ini disebabkan pada 1 jam pertama, zeolit sangat dominan dalam mengadsorpsi methylen blue, sehingga mengalami penurunan konsentrasi yang sangat tajam, hal ini karena zeolit memiliki permukaan yang luas dan bekerja tanpa dipengaruhi sinar UV [14]. Sedangkan pada proses selanjutnya terjadi proses

fotokatalisis dimana yang dominan adalah  $\text{Fe/TiO}_2$ .

$C_0$  adalah konsentrasi limbah awal dan  $C_t$  adalah konsentrasi limbah pada saat  $t$ , maka kurva hubungan antara lama pengadukan terhadap  $\ln C_0/C_t$  dari degradasi *methylen blue* diperlihatkan oleh Gambar 4 sebagai berikut.



**Gambar 4.** Kurva hubungan antara lama pengadukan terhadap  $\ln C_0/C_t$  dari degradasi *methylen blue*

Degradasi methylene blue oleh  $\text{TiO}_2$  dinyatakan dengan kecepatan reaksi kinetik :

$$C_t = C_0 e^{-kt}$$

$$\ln \frac{C_t}{C_0} = -kt$$

dimana :

- $C_0$  = konsentrasi awal *Methylen Blue*
- $C_t$  = konsentrasi *Methylen Blue* pada saat  $t$
- $t$  = waktu
- $k$  = tetapan laju degradasi

Terlihat dari grafik di atas, dengan penambahan zeolit pada  $\text{TiO}_2$  terjadi lonjakan laju reaksi sehingga membentuk garis yang

tajam. Bila grafik tersebut diambil rata-rata regresi linearnya maka diperoleh konstanta laju reaksi ( $\text{jam}^{-1}$ ) sebagaimana pada tabel 4.

**Tabel 4.** Tabel konstanta laju reaksi dari  $\text{TiO}_2$  dan  $\text{Fe/TiO}_2$ -zeolit

Bahan	Persamaan Regresi	Konstanta Laju Reaksi ( $\text{jam}^{-1}$ )
$\text{TiO}_2$	$y = 0,16x + 0,084$	0,160
$\text{Fe/TiO}_2$ -zeolit (1:1)	$y = 0,524x + 1,180$	0,524
$\text{Fe/TiO}_2$ -zeolit (1:2)	$y = 0,632x + 1,368$	0,632
$\text{Fe/TiO}_2$ -zeolit (1:3)	$y = 0,495x + 1,272$	0,495

Aktivitas fotokatalis dalam mereduksi *methylen blue* paling tinggi diperoleh pada  $\text{Fe/TiO}_2$ -zeolit (1:2) dengan konstanta laju reaksi sebesar  $0,632 \text{ jam}^{-1}$ . Nilai konstanta laju reaksi ini jauh lebih besar dibandingkan  $\text{TiO}_2$  tanpa

penambahan Fe dan zeolit. Penambahan Fe saja tanpa zeolit pada  $\text{TiO}_2$  menyebabkan terjadinya penurunan energi bandgap dari  $\text{TiO}_2$  sehingga terjadi pergeseran daerah aktif katalis dari daerah UV ke daerah cahaya tampak. Akibatnya kinerja

fotokatalis  $\text{TiO}_2$  dalam mereduksi *methylen blue* di daerah UV mengalami penurunan. Dilaporkan penambahan Fe pada  $\text{TiO}_2$  dapat menurunkan laju reaksi fotokatalis  $\text{TiO}_2$  dari  $0,129 \text{ jam}^{-1}$  menjadi  $0,012 \text{ jam}^{-1}$  [15].

Dengan penambahan zeolit, terjadi proses adsorpsi terhadap limbah *methylen blue* sehingga laju reaksi penguraian limbah mengalami kenaikan yang cukup tinggi dari  $0,16 \text{ jam}^{-1}$  pada  $\text{TiO}_2$  menjadi  $0,632 \text{ jam}^{-1}$  pada penambahan zeolit 1:2. Pada penambahan zeolit 1:3, karena jumlah zeolit yang terlalu banyak, menyebabkan permukaan aktif dari  $\text{TiO}_2$  tertutupi sehingga aktifitas  $\text{TiO}_2$  untuk mengurai limbah justru mengalami penurunan kembali. Peningkatan aktivitas fotokatalis berbasis  $\text{TiO}_2$  dengan penambahan zeolit ini juga dilaporkan oleh beberapa penelitian yang pernah dilakukan sebelumnya [14,16].

Pada penambahan zeolit 1:3 kenaikan laju reaksi tidak setinggi penambahan zeolit 1:2, yaitu laju reaksi menjadi  $0,495 \text{ jam}^{-1}$ . Diduga hal ini disebabkan permukaan aktif dari  $\text{TiO}_2$  tertutupi oleh zeolit akibat masuk ke dalam pori zeolit dan menjadi penghalang terjadinya reaksi reduksi *methylen blue* sehingga menurunkan aktivitas katalis. Dari tinjauan luas permukaan fotokatalis terlihat bahwa pada penambahan zeolit 1:3, luas permukaan fotokatalis mengalami penurunan dibandingkan luas permukaan pada penambahan zeolit 1:2 walaupun tetap lebih tinggi dibanding luas permukaan  $\text{TiO}_2$ , sehingga memberi efek menurunkan laju reaksinya.

## KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan disimpulkan bahwa Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit mampu mereduksi limbah *methylen blue* dengan konstanta laju reaksi  $0,524 \text{ jam}^{-1}$  untuk Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit (1:1);  $0,632 \text{ jam}^{-1}$  untuk Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit (1:2) dan  $0,495 \text{ jam}^{-1}$  untuk Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit (1:3). Penambahan Fe dan zeolit pada  $\text{TiO}_2$  akan menaikkan aktivitas fotokatalitik dalam mereduksi *methylen blue* pada daerah kerja UV, yang disebabkan terjadinya kombinasi proses adsorpsi dari zeolit, meskipun terjadi penurunan *bandgap* pada fotokatalis  $\text{TiO}_2$  akibat penambahan Fe. Penambahan zeolit pada perbandingan Fe/ $\text{TiO}_2$ -zeolit (1:3), justru akan menghambat permukaan aktif dari  $\text{TiO}_2$  sehingga menurunkan kinerja katalis dalam mendegradasi *methylen blue*.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih kepada Ka. BK2K, Ka. Sub Bid KKPR, Drs. Bambang Sugeng, MT, Dra. Deswita, Agus Sudjatna, AMd. dan Sari Hasnah, A.Md serta KPTF di PSTBM-BATAN

yang telah banyak membantu dalam pengujian, karakterisasi dan penyusunan makalah ini.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Rashed, M.N., El-Amin, A.A., *Photocatalytic Degradation of Methyl Orange in Aqueous  $\text{TiO}_2$  under Different Solar Irradiation Sources*, International Journal of Physical Science, Vol. 2, No.3 (2007) 073-081.
2. Van der Zee F P., *Anaerobic Azo Dye Reduction*, Wageningen University (2002).
3. Wijaya, K., Sugiharto, E., Fatimah, I., Sudiono, S., Kurniaysih, D., *Utilisasi  $\text{TiO}_2$ -Zeolit dan Sinar UV untuk Fotodegradasi Zat Warna Congo Red*, TEKNOIN, 11(3) (2006) 199-209.
4. M. Radecka, M. Rekas, A. Trenczek-Zajac, K. Zakrzewsk, *Importance of the bandgap energi and flatband potential for application of modified  $\text{TiO}_2$  Photoanodes in water photolysis*, J Power Sources, Vol 181 (2008) 46-55.
5. Ramadhana, A.K.K., Wardhani, S., dan Purwonugroho, D., *Fotodegradasi Zat Warna Methyl Orange Menggunakan  $\text{TiO}_2$ -Zeolit dengan Penambahan Ion Persulfat*, Kimia Student Journal, Vol. 1, No. 2 (2013) 168-174.
6. Aliah, H., Sawitri, A., Aji1, M. P., Setiawan, A., Sustini, E., Budiman, M., dan Abdullah, M., *Pelapisan Partikel  $\text{TiO}_2$  pada Polimer Polipropilena dan Aplikasinya sebagai Reusable Photocatalyst*, Prosiding Seminar Nasional Material Fisika, Institut Teknologi Bandung, Bandung (2012).
7. Fatimah, I., dan Wijaya, K., *Sintesis  $\text{TiO}_2$ /Zeolit sebagai Fotokatalis pada Pengolahan Limbah Cair Industri Tapioka secara Adsorpsi-Fotodegradasi*, Teknoin, Vol. 10 (4) (2005) 257-267.
8. Fatimah, I., Sugiharto, E., Wijaya, K., Tahir, I., Kamalia., *Titan Dioksida Terdispersi Pada Zeolit Alam ( $\text{TiO}_2$ /Zeolit) dan Aplikasinya untuk Fotodegradasi Congo Red*, Indonesia Journal of Chemistry, Vol.6, No.1 (2006) 138-42.
9. Gunlazuardi J., *Fotokatalisis pada permukaan  $\text{TiO}_2$  : Aspek Fundamental dan Aplikasinya*, Prosiding Seminar Nasional Kimia Fisika II, Jakarta (2001)
10. Suryanarayana C., Norton M.G., *X-ray Diffraction*, Plenum Press, New York (1998).

11. Fitriah, Desinfeksi air secara fotoelektrokatalisis dengan menggunakan lapisan  $\text{TiO}_2$  yang diimmobilisasi pada logamtitanium, Skripsi, FMIPA,UI,Depok (1998)
12. Mehta P., Mehta R., Surana M., Kabra B. V., *Influence Of Operational Parameters On Degradation Of Commercial Textile Azo Dye Acid Blue 113 (Cyane SR) by Advanced Oxidation Technology*, J. Curr. Chem. Pharm.Sc, Vol.1, No.1 (2011) 28-36.
13. Laoufi N. A, Tassalit D., Bentahar F., *The Degradation of Phenol In Water Solution By  $\text{TiO}_2$  Photocatalysis In A Helical Reactor*, Global Nest, Vol.10, No.3 (2008) 404-418.
14. Christiana A D, Sri Wardhani, Danar Purwonugroho, Pengaruh Konsentrasi  $\text{TiO}_2$  dalam Zeolit Terhadap Degradasi Methylene Blue Secara Fotokatalitik, *Kimia Student Journal*, Vol. 1, No 1 (2014) 8-14.
15. Agus Salim A., Auring R. dan Asep Nana S, Uji Aktivitas Fe/ $\text{TiO}_2$ -N Dalam Pengolahan Limbah Methylen Blue Secara Fotokatalisis, Prosiding Seminar Nasional Hamburan Neutron dan Sinar-X (2015) 1-6.
16. Novita Rizqi A, Sri Wardhani, Mohammad Misbah K, Fotodegradasi Zat Warna Jingga Metil Menggunakan  $\text{TiO}_2$ -Zeolit dengan Penambahan Anion Anorganik  $\text{NO}_3$ , *Kimia Student Journal*, Vol. 1, No 1(2013) 98-104.