



Universitas Indonesia

**STUDI PREPARASI DAN KARAKTERISASI TITANIUM
DIOKSIDA MESOPORI**

SKRIPSI

**Hani Tiara Sasti
0706263164**

**Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Departemen Kimia
Depok
Juli 2011**



Universitas Indonesia

**STUDI PREPARASI DAN KARAKTERISASI TITANIUM
DIOKSIDA MESOPORI**

SKRIPSI

Diajukan sebagai syarat memperoleh gelar sarjana

**Hani Tiara Sasti
0706263164**

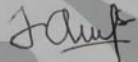
**Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Departemen Kimia
Depok
Juli 2011**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri dan semua sumber baik yang dikutip maupun yang dirujuk telah saya nyatakan dengan benar

Nama : Hani Tiara Sasti

NPM : 0706263164

Tanda tangan : 

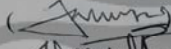
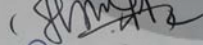
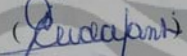

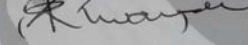
Tanggal : 06 Juli 2011

HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh :
Nama : Hani Tiara Sasti
NPM : 0706263164
Program Studi : S1 Kimia -Reguler
Judul Skripsi : Studi Preparasi dan Karakterisasi Titanium Dioksida Mesopori

Telah Berhasil dipertahankan di hadapan dewan penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar sarjana sains pada Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia

Dewan Penguji

Pembimbing 1 : Dr. Jarnuzi Gunlazuardi ()
Pembimbing 2 : Dr. Yuni Krisyuningsih K ()
Penguji : Dr Widayati Wibowo ()
Penguji : Dr Asep Saefumillah ()
Penguji : Dr Riwandi Sihombing. ()

Ditetapkan di : Depok

Tanggal :

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis persembahkan kepada Allah Yang Maha Esa atas segala ridho, rahmat, kasih sayang dan hidayahNya sehingga penulis dapat menyelesaikan skripsi yang berjudul **Studi Preparasi dan Karakterisasi Titanium Dioksida Mesopori**. Penulis menyadari tanpa bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak, skripsi ini tidak akan selesai. Oleh karena itu, penulis mengucapkan terima kasih kepada

1. Dr. Jarnuzi Gunlazuardi dan Dr. Yuni K Krisnandi selaku pembimbing yang telah memberikan semangat, motivasi, saran dan ilmu yang sangat berarti bagi penulis.
2. Kedua orang tua yang telah memberikan dukungan, semangat, dan doa sehingga penulis dapat bertahan dalam menyelesaikan tugas akhir ini.
3. Kepada Dr. Ridla Bakri selaku ketua Departemen Kimia FMIPA UI.
4. Kepada Ibu Ir. Widyastuti Samadi selaku koordinator akademik dan ibu Dra. Tresye Utari, M.Si selaku koordinator penelitian.
5. Seluruh dosen yang telah banyak memberikan ilmu yang bermanfaat bagi penulis.
6. Pak Hedi dan Pak Nursoleh atas bantuan dan idenya dalam desain reaktor
7. Grup meeting fotokatalis Pak Kholid, Pak Anthony, Pak Hedi, Kak Destya, Kak Nadiroh, Fitri Amalia, Mbak Sofie atas diskusi dan masukannya yang sangat bermanfaat bagi penelitian penulis.
8. Puslitkim LIPI serpong dan Departemen Fisika UI atas peminjaman alat autoklaf dan termometer digitalnya.
9. Pihak Lab Afiliasi, Pak Sunardi, Kak Febri, Dyo, Kak puji, Kak Rasyid, terima kasih atas bantuannya dalam pengoperasian GC.
10. Pak Marji dan Mas Hadi, Pak Sustrisno (Babeh Perpus Depkim) dan semua karyawan departemen Kimia UI.
11. Dwi Utami, Alip Firmansyah, kak Irwansyah, terima kasih atas jurnal-jurnalnya.
12. Adikku wiwid, terima kasih untuk waktunya untuk mendengarkan cerita selama masa kuliah sampai skripsi, semoga bisa bertahan di almamater yang sama.

13. Rekan-rekan penelitian kimia 07, 06, 05, Zetri, Ina, Sherly, Evi, Dante, Nisa, Prita, Ikan, Awe, Kak Sabri, Kak Wid, Kak Nadya, Kak Omi, Kak Nani, Kak Nope terima kasih atas saran dan bantuannya selama penelitian.
14. Rekan-rekan Lab lantai 3, kak temmy, kak asri, kak atin, bu nana, bu indri.
15. Rosa dan Manah, terima kasih atas tumpangnya di kos.
16. Kak Sonia, Ika A, Yuliga, Silvi, Ikor, Savitri terima kasih atas pinjaman buku dan slide-slide kuliahnya
17. Rekan-rekan Kimia 07, terima kasih atas pengalaman dan ceritanya selama masa kuliah.
18. Semua kerabat, rekan dan keluarga yang tidak bisa penulis sebutkan satu persatu.

Akhir kata, saya berharap Tuhan Yang Maha Esa berkenan membalas segala kebaikan semua pihak yang telah membantu. Semoga skripsi ini membawa manfaat bagi pengembangan ilmu.

Penulis
2011

HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI
TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama : Hani Tiara Sasti
NPM : 0706263164
Program Studi : S1-Kimia Reguler
Departemen : Kimia
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Jenis karya : Skripsi

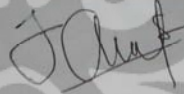
demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif (*Non-exclusive Royalty-Free Right*)** atas karya ilmiah saya yang berjudul :

Studi Preparasi dan Karakterisasi Titanium Dioksida Mesopori

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di: Depok
Pada tanggal: 06 Juli 2011
Yang menyatakan



(Hani Tiara Sasti)

ABSTRAK

Nama : Hani Tiara Sasti
NPM : 0706263164
Program Studi : S1 Kimia -Reguler
Judul Skripsi : Studi Preparasi dan Karakterisasi Titanium Dioksida Mesopori

Sintesis TiO₂ mesopori telah dilakukan dengan metode hidrotermal pada suhu 120 °C selama 18 jam, dengan titanium tetraisopropoksida (TTIP) digunakan sebagai prekursor dan polietilen glikol (PEG) sebagai *template*. Hasil sintesis dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 8 jam untuk menghilangkan *template*. Hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD, SEM, BET, FTIR, dan UV-DRS. Hasil karakterisasi XRD dan UV-DRS menunjukkan bahwa TiO₂ hasil sintesis merupakan kristal bertipe anatase dengan sedikit rutil sebagai pengotor, dengan nilai energi celah sebesar 3,13 eV. Hasil karakterisasi BET menunjukkan pola isoterm adsorpsi mesopori dengan *hysteris loop*, dengan diameter rata-rata pori sebesar 7,23 nm dan luas permukaan sebesar 35,56 m²/g. Hasil sintesis diuji aktivitas fotokatalitiknya terhadap degradasi formaldehida. Degradasi fotokatalitik dilakukan dalam reaktor yang dilengkapi dengan lampu UV dan tabung yang telah dilapisi TiO₂ hasil sintesis. Hasil degradasi formaldehida secara fotokatalitik menunjukkan penurunan konsentrasi formaldehida hingga 26 % pada menit ke-40. Hasil ini lebih baik dibandingkan proses fotokatalisis, dengan konsentrasi sisa formaldehida sebesar 49 %.

Kata kunci : mesopori, TiO₂
xiv+63 halaman :23 gambar, 2 tabel
Daftar referensi :32 (1956-2011)

ABSTRACT

Name : Hani Tiara Sasti
Student number : 0706263164
Study program : Bachelor-Chemistry-Regular
Title : Study of Preparation and Characterization of Mesoporous Titanium Dioxide

Mesoporous TiO₂ has been synthesized using hydrothermal method at 120 °C for 18 hours, with titanium tetraisopropoxide (TTIP) as precursor and polyethylene glycol (PEG) as template. The sample was calcined at 550 °C for 8 hours to remove the template. The as-synthesized sample was characterized by XRD, SEM, BET surface area, FTIR, and UV-DRS. Characterization by XRD and UV-DRS showed anatase and slightly rutile phase, as impurities, for crystal structure with band gap energy 3,13 eV, respectively the result of BET surface area showed hysteresis loop in its adsorption isotherm curve. The surface area of sample was 35,56 m²/g, with average pore diameter about 7,23 nm. The photocatalytic activity of sample was studied by photodegradation of formaldehyde in gas phase, using batch reactor employed with as-synthesized TiO₂ coated glass tube as reaction vessel. The result of photocatalytic process showed degradation of formaldehyde concentration up to 26 % after 40 minute reaction. This result is better than that obtained in photolysis process, with residual concentration of formaldehyde about 49 %.

Keywords : mesoporous, TiO₂
xiv+63 pages : 23 pictures, 2 table
Bibliography : 32 (1956-2011)

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	ii
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	iii
LEMBAR PENGESAHAN	iv
KATA PENGANTAR.....	v
LEMBAR PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH	vii
ABSTRAK	viii
DAFTAR ISI	x
DAFTAR GAMBAR	xii
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN	xiv
1. PENDAHULUAN	1
1.1. Latar Belakang	2
1.2. Perumusan Masalah	2
1.3. Tujuan Penelitian	2
1.4. Hipotesis.....	2
2. TINJAUAN PUSTAKA	3
2.1. Fotokatalis	3
2.2. Semikonduktor	3
2.3. Titanium Dioksida	5
2.4. Proses Fotokatalitik TiO ₂	6
2.5. TiO ₂ Mesopori.....	7
2.6. Proses Hidrotermal	8
2.7. Formaldehida	9
2.8. Polietilen Glikol	10
2.9. <i>X-Ray Diffraction</i>	10
2.10. Spektrofotometer FTIR	12
2.11. DTA-TGA	12
2.11.1. <i>Differential Thermal Analysis (DTA)</i>	12
2.11.2. <i>Thermogravimetry Analysis (TGA)</i>	13
2.12. Spektrofotometer UV-DR	13
2.13. <i>Scanning Electron Microscope</i>	14
2.14. Kromatografi Gas	15
2.15. Metode BET	16
3. METODE PENELITIAN	18
3.1. Bahan dan Peralatan Penelitian	18
3.1.1. Bahan	18
3.1.2. Peralatan	18
3.2. Prosedur Percobaan	18
3.2.1. Sintesis TiO ₂ dengan Metode Hidrotermal	18
3.2.2. Immobilisasi Padatan TiO ₂ pada Kaca Preparat.....	19
3.2.3. Aplikasi TiO ₂ Mesopori sebagai Fotokatalis	19
3.2.3.1. Immobilisasi TiO ₂ pada Tabung Reaktor	19

3.2.3.2.Reaktor Fotokatalitik	20
3.2.3.3.Degradasi Formaldehida dengan TiO ₂ Mesopori	20
3.2.3.4.Diagram Alur Penelitian	21
3.2.3.5.Diagram Sintesis TiO ₂ Mesopori	22
4. HASIL DAN PEMBAHASAN	23
4.1. Hasil Sintesis dengan Metode Hidrotermal	23
4.1.1. Karakterisasi XRD.....	27
4.1.2. Karakterisasi XRD low angle.....	29
4.1.3. Karakterisasi DTA-TGA.....	30
4.1.4. Karakterisasi FTIR.....	31
4.1.5. Karakterisasi UV-DRS.....	33
4.1.6. Karakterisasi SEM	35
4.1.7. Karakterisasi BET	37
4.2. Aplikasi Fotokatalis TiO ₂	40
5. KESIMPULAN DAN SARAN	42
5.1. Kesimpulan	42
5.2. Saran	43
6. DAFTAR REFERENSI	44



DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Energi Pita Beberapa Semikonduktor	4
Gambar 2.2	Struktur Kristal TiO ₂	5
Gambar 2.3	Proses Fotokatalisis pada Semikonduktor	7
Gambar 2.4	Alat Autoklaf	8
Gambar 2.5	Molekul Formaldehida	9
Gambar 2.6	Difraksi Sinar X	11
Gambar 4.1	Sol TiO ₂	24
Gambar 4.2	Alat Autoklaf	25
Gambar 4.3	<i>Slurry</i> TiO ₂	26
Gambar 4.4	Hasil Sintesis	26
Gambar 4.5	Proses Pembentukan TiO ₂ Mesopori.....	27
Gambar 4.6	Pola Difraksi TiO ₂ Mesopori	28
Gambar 4.7	Spektrum XRD <i>Low Angle</i>	29
Gambar 4.8	Spektrum DTA-TGA TiO ₂ Mesopori	30
Gambar 4.9	Spektrum FTIR TiO ₂ Mesopori	32
Gambar 4.10	Grafik Panjang Gelombang terhadap Reflektan	34
Gambar 4.11	Grafik Energi terhadap Faktor KM	35
Gambar 4.12	Foto SEM TiO ₂ Perbesaran 20000	36
Gambar 4.13	Foto SEM TiO ₂ Perbesaran 85000	36
Gambar 4.14	Foto SEM TiO ₂ Perbesaran 100000	37
Gambar 4.15	Isoterm Adsorpsi TiO ₂	38
Gambar 4.16	Struktur <i>lamellar</i> dan <i>hexagonal packed</i>	39
Gambar 4.17	Kurva Proses Degradasi Formaldehida	41

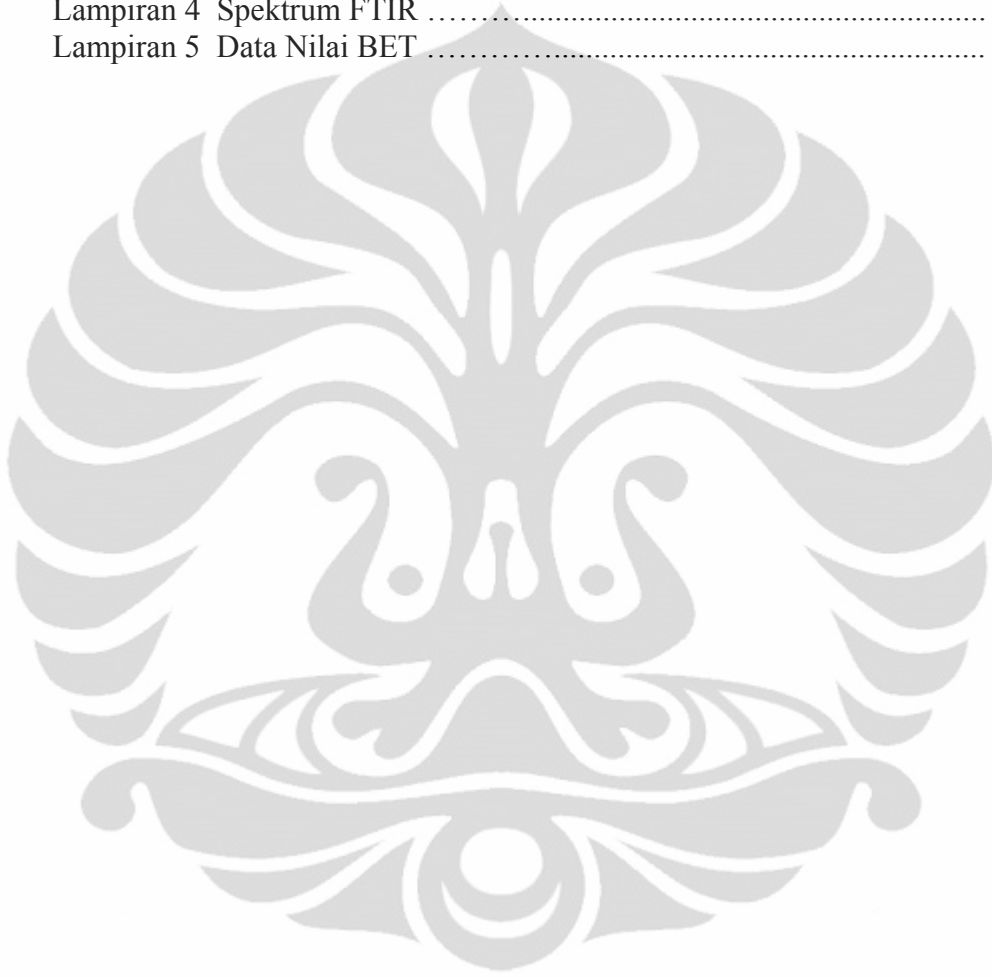
DAFTAR TABEL

Tabel 4.1.	Data Difraksi TiO_2 Standar dan TiO_2 Mesopori.....	28
Tabel 4.2.	Data Luas Permukaan serta Volume Pori	38



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1	Data Perhitungan Degradasi Formaldehida.....	47
Lampiran 2	Diagram Reaktor Proses Degradasi Formaldehida.....	54
Lampiran 3	Spektrum DTA-TGA.....	55
Lampiran 4	Spektrum FTIR	56
Lampiran 5	Data Nilai BET	59



BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Titanium dioksida sebagai fotokatalis terbukti cukup efektif dalam degradasi polutan organik secara fotokatalitik di udara dan air (Zhang et al., 2003). Titanium dioksida juga banyak diaplikasikan sebagai semikonduktor pada sel surya, sensor serta digunakan sebagai material swabersih. Berawal dari penelitian Fujishima dan Honda mengenai efek pemecahan air secara fotokatalitik pada elektroda TiO_2 (Linsebigler et al., 1995), telah dilakukan berbagai pengembangan dan modifikasi material TiO_2 untuk meningkatkan aktifitas fotokatalitiknya. Modifikasi yang dilakukan salah satunya adalah sintesis material TiO_2 mesopori.

Sintesis material TiO_2 mesopori dilaporkan oleh Antonelli dan Ying (1995) dengan metode sol-gel yang telah dimodifikasi, dan menggunakan titanium isopropoksida sebagai prekursor serta surfaktan fosfat sebagai *template*. Bu et al. (2005) juga melaporkan sintesis TiO_2 mesopori dengan menggunakan tetrabutylortotitanat sebagai prekursor serta polietilen glikol sebagai *template*. Hasil sintesis TiO_2 mesopori yang dilaporkan memiliki luas permukaan serta aktivitas fotokatalitik yang besar. Sementara Kim dan Kwak (2007) melaporkan sintesis material TiO_2 mesopori dengan metode hidrotermal. Dengan adanya proses hidrotermal diharapkan akan meningkatkan kristalinitas dari TiO_2 mesopori sehingga juga akan meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya.

Pada penelitian ini, TiO_2 mesopori disintesis melalui metode hidrotermal dengan menggunakan titanium isopropoksida sebagai prekursor dan polietilen glikol sebagai *template* dilanjutkan dengan pemanasan untuk menghilangkan *template* sehingga akan terbentuk kerangka mesopori. Material TiO_2 mesopori hasil sintesis diuji aktivitas fotokatalitiknya terhadap degradasi formaldehida.

1.2 Perumusan Masalah

Titanium dioksida sebagai fotokatalis telah terbukti cukup efektif pada degradasi polutan organik secara fotokatalitik. Namun fenomena fotokatalis merupakan fenomena kimia permukaan sehingga diperlukan material dengan luas permukaan yang besar sehingga dapat diaplikasikan untuk degradasi polutan-polutan organik yang terdapat dalam atmosfer, terutama terkait aplikasi eliminasi *indoor air pollution*. Titanium dioksida mesopori merupakan material anorganik berpori dengan diameter pori sebesar 2-50 nm. Dengan adanya pori-pori tersebut diharapkan akan meningkatkan luas permukaan material TiO_2 sehingga akan meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya.

1.3 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari sintesis dan karakterisasi TiO_2 mesopori dengan menggunakan polietilen glikol sebagai *template*. Pada penelitian ini juga diuji aktivitas fotokatalitik TiO_2 hasil sintesis terhadap degradasi formaldehida.

1.4 Hipotesis

Material TiO_2 mesopori dapat disintesis dengan menggunakan polietilen glikol sebagai *template* sehingga akan mengontrol ukuran pori dan memberikan kerangka mesopori. Dengan terbentuknya kerangka mesopori diharapkan akan meningkatkan luas permukaan material serta aktivitas fotokatalitiknya.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1. Fotokatalis

Terminologi fotokatalis merupakan kombinasi proses fotokimia dengan katalis. Cahaya maupun katalisnya, keduanya dibutuhkan dalam mengakselerasi reaksi kimia, sehingga fotokatalis dapat didefinisikan sebagai akselerasi fotoreaksi oleh adanya katalis. Reaksi yang diinduksikan cahaya tersebut berlangsung di permukaan katalis. Secara umum, fotokatalis dapat terbagi menjadi dua jenis yaitu:

1. Fotokatalis homogen yang melibatkan katalis, medium, dan reaktan berada dalam satu fasa, umumnya katalis berupa suatu oksidator seperti ozon dan hidrogen peroksida.
2. Fotokatalis heterogen dimana proses ini melibatkan katalis yang tidak satu fasa dengan medium dan reaktan, umumnya katalis berupa semikonduktor seperti titanium dioksida (TiO_2), seng oksida (ZnO), dan kadmium sulfat (CdS) sebagai katalis.

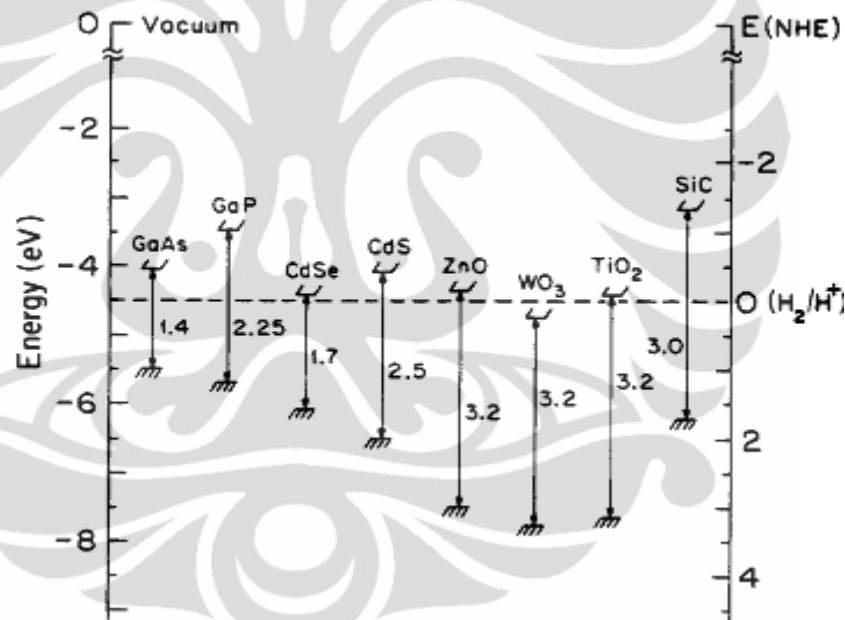
Berdasarkan tempat terjadinya eksitasi, fotokatalis secara umum dikelompokkan menjadi dua, yaitu pertama, fotoeksitasi awal terjadi pada molekul yang teradsorpsi lalu berinteraksi dengan substrat katalis. Proses ini dinamakan fotoreaksi yang terkatalisis. Kedua, fotoeksitasi awal terjadi pada substrat katalis, lalu mentransfer elektron atau energi ke molekul yang teradsorpsi (Linsebigler et al., 1995).

2.2. Semikonduktor

Semikonduktor merupakan bahan yang memiliki energi celah (E_g) antara 0,5–5,0 eV. Bahan dengan energi celah di atas kisaran energi celah semikonduktor merupakan isolator. Tidak seperti bahan logam yang mempunyai tingkat energi yang kontinu, adanya energi celah atau *band gap* pada semikonduktor, menyebabkan proses penggabungan kembali elektron dan *hole* yang dihasilkan dari proses fotoeksitasi tidak cepat terjadi. Hal ini menyebabkan waktu hidup pasangan *electron-hole* menjadi lebih lama,

sehingga dapat mengalami transfer muatan pada permukaan (Linsebigler et al., 1995).

Semikonduktor yang menyerap cahaya dengan energi yang sama atau lebih besar dari energi celahnya akan menghasilkan fotoelektron dan *photohole*, yang dapat dikelola untuk menjalankan reaksi redoks. Secara termodinamik, tingkat energi pada sisi pita konduksi merupakan ukuran kekuatan reduksi dari elektron, sedangkan energi pada sisi pita valensi menunjukkan kekuatan *hole* untuk melakukan oksidasi. Pada gambar diperlihatkan beberapa bahan semikonduktor beserta energi celahnya dan korelasinya dengan potensial redoks, yang memberikan gambaran wilayah reaksi fotokatalis yang dapat diakomodirnya.



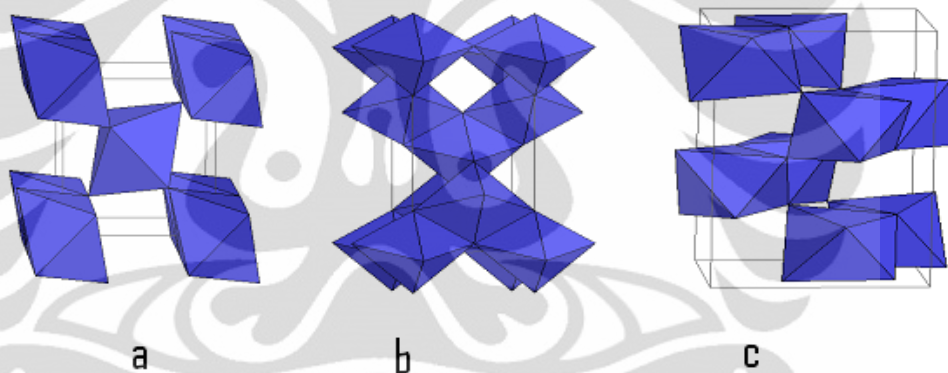
Gambar 2.1 Energi Pita Beberapa Semikonduktor (Linsebigler et al., 1995)

Pada Gambar 2.1 ditampilkan beberapa macam semikonduktor beserta celah energinya yang memberikan gambaran wilayah reaksi fotokatalis yang dapat diakomodirnya. TiO₂ merupakan semikonduktor yang banyak dipilih sebagai fotokatalis, dikarenakan inert secara biologi dan kimia, stabil terhadap korosi akibat foton dan reaksi kimia, dan mempunyai daya oksidasi yang tinggi yaitu sebesar 3,1 V terhadap elektroda hidrogen.

2.3. Titanium Dioksida

Seperti yang terlihat pada Gambar 2.2, berdasarkan struktur kristalnya, titanium dioksida terbagi menjadi tiga jenis, yaitu anatase, rutil, dan brookite. TiO_2 tipe anatase memiliki aktivitas fotokatalitik yang lebih besar daripada tipe lainnya. Hal ini dikarenakan luas permukaan tipe anatase lebih besar daripada tipe rutil sehingga sisi aktif per unit anatase lebih besar daripada yang dimiliki rutil.

Struktur anatase memiliki band gap sebesar 3,2 eV yang setara dengan energy dengan panjang gelombang 388 nm. Untuk struktur rutil, memiliki band gap sebesar 3,0 eV setara dengan energy dengan panjang gelombang 413 nm.



Gambar 2.2 Struktur Kristal TiO_2 : (a) Brookite, (b) Anatase, (c) Rutil
(Linsebigler et. al, 1995)

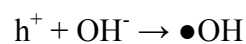
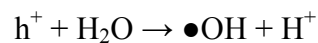
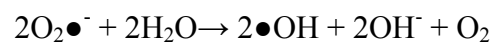
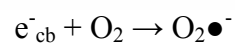
Energi pita valensi untuk anatase dan rutil hampir mirip, yaitu sangat rendah dalam diagram energi. Hal ini menandakan kedua struktur tersebut dapat menghasilkan *hole* dengan daya oksidasi yang besar. Adanya *hole* dapat menyebabkan terjadinya reaksi oksidasi, apabila *hole* ini mencapai permukaan, karena *hole* merupakan oksidator yang kuat. *Hole* yang bereaksi dengan air atau gugus hidroksil dapat menghasilkan radikal hidroksil ($\bullet\text{OH}$), yang dapat berperan sebagai oksidator kuat, sehingga dapat mengoksidasi sebagian besar zat organik.

Energi pita konduksi untuk rutil, nilainya mendekati potensial yang diperlukan untuk mereduksi air menjadi gas hidrogen secara elektrolisis, tetapi anatase memiliki tingkat energi konduksi yang lebih tinggi, sehingga elektron pada pita konduksinya mampu mereduksi molekul oksigen (O₂) menjadi superoksida (O₂⁻). Superoksida memiliki sifat yang mirip dengan radikal hidroksil dalam mendegradasi material organik.

2.4. Proses fotokatalisis TiO₂

Ilustrasi mengenai proses fotokatalisis diperlihatkan pada Gambar 2.3. Proses fotokatalisis pada semikonduktor diawali dengan terbentuknya pasangan *electron-hole* (Linsebigler et al., 1997) Jika suatu semikonduktor seperti TiO₂, menyerap energi yang sebanding atau lebih besar dari energi celahnya, maka elektron pada pita valensi (*valence band*, VB) akan tereksitasi ke pita konduksi (*conduction band*, CB), sehingga menghasilkan *hole* (muatan positif) pada VB yang ditinggalkan. Elektron pada pita konduksi, dan *hole* pita valensi dapat mengalami beberapa reaksi lanjutan.

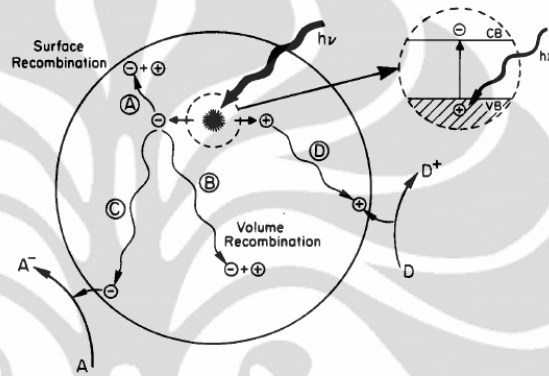
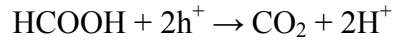
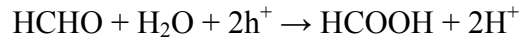
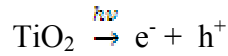
Pertama, elektron dan *hole* dapat berkompetisi dan berdifusi dengan cepat ke permukaan. Jika pada permukaan semikonduktor terdapat spesi akseptor elektron, maka akan tereduksi oleh elektron. Namun jika terdapat spesi donor elektron seperti ion hidroksil (OH⁻) atau molekul air (H₂O) pada permukaan semikonduktor, maka akan teroksidasi oleh *hole*. Reaksi yang terjadi yaitu :



Kedua, elektron dan *hole* juga dapat bereaksi sesamanya menghasilkan suatu spesi netral dengan melepaskan energi panas. Reaksi ini dapat terjadi pada permukaan atau di dalam semikonduktor.

Proses fotokatalis dapat dimanfaatkan untuk mengoksidasi senyawa polutan organik menjadi spesi yang tidak berbahaya. Pada penelitian ini,

digunakan senyawa formaldehida untuk menguji aktivitas fotokatalitik pada TiO_2 . Reaksi yang terjadi, yaitu (Noguchi et al., 1998):



Gambar 2.3 Proses Fotokatalisis pada Semikonduktor (Linsebigler et al., 1995)

2.5. TiO_2 mesopori

Material berpori, menurut *International Union of Pure and Applied Chemistry* (IUPAC) diklasifikasikan menjadi tiga jenis berdasarkan ukuran diameter pori-porinya. Material mikropori dengan diameter pori kurang dari 2 nm, material mesopori dengan diameter pori 2 sampai 50 nm, dan material makropori dengan diameter pori lebih besar dari 50 nm (Corma, 1997). Material TiO_2 mesopori diperoleh dari kumpulan surfaktan atau polimer yang berperan sebagai *template* yang mengatur komponen anorganik sehingga diperoleh struktur kerangka yang baik.

TiO_2 mesopori disintesis pada suhu ruang atau kondisi hidrotermal, dengan kehadiran anion, kation atau surfaktan netral, pada kondisi netral atau asam. Surfaktan merupakan kunci pada pembentukan material mesopori. Spesi anorganik juga berperan penting pada pengaturan molekul surfaktan. Langkah umum pembuatan TiO_2 mesopori meliputi proses sintesis, pengeringan, dan penghilangan *template*. Komponen utama proses sintesis merupakan

prekursor, *template*, dan pelarut. Metode dan kondisi reaksi digunakan untuk menghilangkan *template* yang dapat mempengaruhi fraksi volume pori, porositas, dan ukuran pori material. Salah satu metode yang dapat digunakan untuk menghilangkan *template* adalah kalsinasi. Wujud fisik material TiO₂ mesopori, dapat berupa padatan atau lapisan tipis pada suatu bahan penyangga. Ukuran pori material TiO₂ mesopori dapat dikontrol oleh panjang rantai surfaktan, penambahan materi organik, metode penghilangan *template*, dan kondisi sintesis.

2.6. Proses hidrotermal

Proses hidrotermal didefinisikan sebagai metode pembuatan kristal yang tergantung pada kelarutan mineral dalam air panas di bawah kondisi tekanan tinggi (Byrappa dan Adschiri, 2007). Pembuatan kristal dengan proses hidrotermal meliputi berbagai macam teknik pembentukan kristal dari larutan berair pada temperature dan tekanan uap tinggi. Pada proses hidrotermal, pertumbuhan kristal dilakukan dalam suatu piranti yang terdiri dari wadah baja tertutup rapat yaitu autoklaf pada Gambar 2.4.



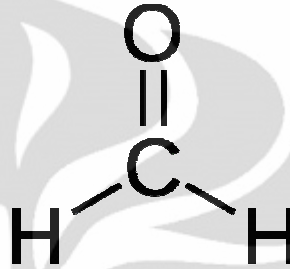
Gambar 2.4 Alat Autoklaf (Byrappa dan Adschiri, 2007)

Keuntungan proses hidrotermal dibandingkan metode pertumbuhan kristal yang lain meliputi kemampuan untuk menciptakan tahap pembentukan kristal yang tidak stabil pada titik lelehnya. Keuntungan lain adalah material yang mempunyai tekanan uap yang tinggi, dekat titik lelehnya juga dapat tumbuh dengan proses hidrotermal. Proses hidrotermal juga sesuai untuk

pertumbuhan kristal dengan kualitas yang baik dengan komposisi yang dapat dikontrol (Byrappa dan Adschiri, 2007).

2.7. Formaldehida

Formaldehida merupakan senyawa golongan aldehyd dengan rumus HCHO (Gambar 2.5).



Gambar 2.5 Molekul Formaldehida (Read, 1973)

Formaldehida merupakan bahan yang banyak digunakan di industri sebagai bahan dasar pembuat resin atau *building block material*. Formaldehida juga banyak terdapat pada produk-produk rumah tangga seperti cat, lem, desinfektan, atau anti jamur pada furnitur kayu (*Indoor Air Quality*, 2011). Formaldehida juga dapat berasal dari pembakaran tidak sempurna material-material organik, serta asap rokok. Formaldehida pada temperatur ruang, berada dalam wujud gas, tetapi dapat larut dalam air (biasanya dijual dalam kadar larutan 37 % menggunakan merek dagang formalin atau formol) (Read, 1973).

Formaldehida bersifat toksik dengan LD₅₀ kurang dari 50 mg/kg yaitu sebesar 42 mg/kg. Paparan jangka panjang formaldehida bersifat karsinogenik, serta dalam konsentrasi rendah dapat menyebabkan iritasi dan reaksi alergi. Emisi formaldehida dari furniture-furnitur rumah tangga atau material bangunan dipercaya sebagai salah satu penyebab *sick building syndrome*, suatu kondisi dengan gejala seperti sakit kepala, mual, dan lelah jika berada terlalu lama dalam sebuah bangunan (Noguchi et al., 1998).

2.8. Polietilen glikol

Polietilen glikol (PEG) merupakan senyawa polieter, senyawa ini juga dikenal dengan nama polietilen oksida (PEO) atau polioksietilen (POE), tergantung dari bobot molekulnya. PEG, PEO, atau POE merupakan polimer dari etilen oksida. Umumnya PEG merupakan polimer etilen oksida dengan bobot molekul kurang dari 20.000 g/mol, sedangkan PEO merupakan polimer etilen oksida dengan bobot molekul lebih dari 20.000 g/mol. Polietilen glikol mempunyai rumus molekul sebagai berikut:



Penamaannya diikuti oleh sejumlah angka yang mencerminkan besarnya berat molekul polietilen glikol, seperti PEG 200, PEG 400, PEG 1000, PEG 2000. Polietilene glikol disintesis dari reaksi antara etilen oksida dengan air, etilen glikol, atau oligomer etilen glikol. Reaksi ini dikatalisis oleh katalis asam atau basa. Etilen glikol dan oligomernya lebih disukai sebagai prekursor (*starting material*) dibandingkan air, dikarenakan senyawa ini memungkinkan pembentukan polimer dengan polidispersitas yang rendah (distribusi berat molekul yang lebih sempit). Rantai polimer yang terbentuk dari rasio antar reaktan, reaksi yang terjadi:



Polietilen glikol mempunyai sifat pelumas yang baik serta tahan panas. Kehadiran atom oksigen yang kaya elektron dalam struktur polimer memberikan kesempatan untuk berkoordinasi (PEG, 2011).

2.9. XRD (*X-Ray Diffraction*)

Difraksi sinar-X (XRD) merupakan metode yang digunakan untuk menentukan struktur kristal dari suatu padatan. Bila seberkas sinar-X menumbuk permukaan bidang kristal Miller, maka sebagian sinar akan dihamburkan atau diteruskan ke lapisan bidang atom atau molekul lainnya. Sinar-X yang dihamburkan bersifat koheren dapat berinterferensi secara konstruktif atau dekonstruktif. Interferensi konstruktif terjadi apabila berkas sinar-X yang dihamburkan berada dalam keadaan satu fasa. Kondisi satu fasa

tercapai apabila jarak $AB + BC$ sama dengan harga bilangan bulat (n) dari panjang gelombang.

$$AB + BC = n\lambda$$

n : orde difraksi

Dikarenakan $AB + BC = 2d \sin \theta$, maka interferensi konstruktif dari berkas sinar-X pada sudut θ adalah :

$$n\lambda = 2d \sin \theta$$

d : jarak antar kristal

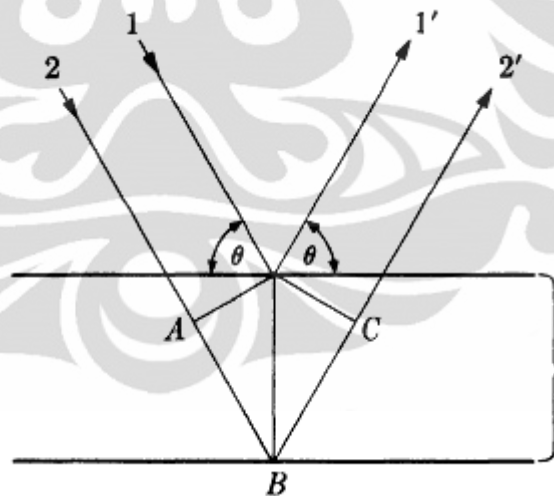
θ : sudut difraksi

λ : panjang gelombang sinar-X

Persamaan di atas dikenal sebagai persamaan Bragg, sedangkan sinar-X akan dipantulkan jika sudut datang sinar-X sama dengan:

$$2\theta = n\lambda / 2d$$

Difraksi sinar-X pada suatu kristal dapat dilihat pada Gambar 2.6



Gambar 2.6 Difraksi Sinar X (Cullity, 1956)

Dari hasil pengukuran akan didapatkan nilai d dan sudut 2θ serta intensitasnya, dengan membandingkannya dengan data standar dapat diketahui senyawa dan struktur kristal sampel (Cullity, 1956).

2.10. Spektrofotometer FTIR

Spektrofotometer FTIR merupakan teknik pengukuran yang menggunakan persamaan transformasi Fourier, yang digunakan untuk mengkonversi spektrum waktu ke spektrum frekuensi. Daerah radiasi spektrum infra merah (IR) berkisar pada bilangan gelombang $12800 - 10 \text{ cm}^{-1}$, dan umumnya yang digunakan adalah daerah IR tengah, dengan bilangan gelombang $4000-690 \text{ cm}^{-1}$.

Molekul hanya menyerap frekuensi tertentu dari radiasi infra merah, untuk dapat mengabsorpsi, molekul harus memiliki perubahan momen dipol, sebagai akibat dari vibrasi. Perbedaan radiasi medan listrik berinteraksi dengan molekul menimbulkan perubahan amplitudo sebagian gerakan molekul. Setiap tipe ikatan yang berbeda akan memiliki frekuensi vibrasi yang berbeda pula, maka tidak ada molekul yang berbeda strukturnya memiliki spektrum infra merah yang tepat sama (Sunardi, 2008).

2.11. Differential Thermal Analysis (DTA) - Thermal Gravimetric Analysis (TGA)

Teknik pengukuran DTA –TGA termasuk dalam metode analisis termal, berdasarkan prinsip pengukuran perubahan sifat fisika dan kimia suatu material terhadap fungsi suhu (Daniels, 1973).

2.11.1. DTA

DTA merupakan salah satu metode analisis termal untuk mengukur perubahan kandungan panas (entalpi) suatu material terhadap suhu. Pada analisis DTA sampel dan pembanding diberikan kalor dengan jumlah yang tetap. Pada saat sampel mengalami perubahan termal, maka akan terjadi penyerapan atau pembebasan panas. Akibat adanya penyerapan atau pembebasan panas, maka akan terjadi perubahan suhu. Perbedaan suhu sampel dan pembanding diukur secara kontinu seiring dengan waktu

$$\Delta T = T_{\text{sampel}} - T_{\text{pembanding}}$$

Kurva yang didapat merupakan plot antara suhu dengan perubahan panas. Pada proses endotermik (penyerapan panas) maka akan menyebabkan kurva membelok ke bawah (membentuk lembah), sedangkan pada proses eksotermik (pembebasan panas) akan menyebabkan kurva membentuk puncak (Daniels, 1973).

2.11.2. TGA

Analisis TGA berdasarkan pengukuran perubahan berat suatu material jika temperature dinaikkan secara linier. Hasil yang didapat berupa kurva termogram temperature terhadap perubahan berat atau persen berat. Pengukuran dengan TGA umumnya digunakan untuk mengetahui suhu optimum pengeringan zat pada analisa gravimetri. Selain itu, analisis dengan TGA juga digunakan untuk memperkirakan reaksi dekomposisi yang berlangsung selama pemanasan.

Pada penelitian ini, analisis dengan DTA-TGA digunakan untuk menentukan suhu optimum proses kalsinasi serta transformasi fasa pada hasil sintesis (Daniels, 1973).

2.12. Spektrofotometer UV-Diffuse Reflectance (UV-DRS)

Karakterisasi UV-DRS digunakan untuk menentukan nilai celah energi titanium dioksida hasil sintesis. Prinsip spektrofotometer UV-DR berdasarkan teori Kubelka-Munk. Berdasarkan teori Kubelka – Munk, jika suatu lapisan material dengan ketebalan x , diradiasikan dengan sejumlah energi foton, maka material tersebut akan menyerap atau menghamburkan foton. Flux radiasi dapat berada dalam arah positif (I) atau negatif (J). Jika radiasi foton melewati lapisan material setebal dx , maka flux radiasi I , akan berkurang sebesar $KIdx$ karena adanya absorpsi, dan akan bertambah sebesar $SIdx$ karena adanya hamburan. Hal ini, juga terjadi untuk flux radiasi J , sehingga dapat dituliskan sebagai:

$$\frac{-dI}{dx} = -(K + S)I + SJ$$

$$\frac{dJ}{dx} = -(K + S)J + SI$$

dengan K merupakan konstanta absorpsi dan S merupakan konstanta hamburan.

Dengan menyelesaikan persamaan tersebut, maka didapatkan

$$R = \frac{1 - R_g(a - b \coth bSX)}{a - R_g + b \coth bSX}$$

Dengan R : reflektan

R_g : *background* reflektan

a : $1 + K/S$

b : $(a^2 - 1)^{0,5}$

Jika ketebalan lapisan material besar, maka reflektan akan menjadi R_∞ , sehingga persamaan di atas disusun ulang sebagai

$$\frac{K}{S} = \frac{(1 - R_\infty)^2}{2R_\infty} = F(R_\infty)$$

Dimana $F(R_\infty)$: faktor Kubelka-Munk (KM)

Nilai $F(R_\infty)$ mempunyai hubungan dengan energi foton melalui persamaan berikut :

$$F(R) = A (h\nu - E_g)^{m^2}$$

Dengan A : konstanta proporsional

Dengan memplotkan nilai $F(R)$ terhadap $h\nu$ dan ekstrapolasi daerah liniernya, maka dapat ditentukan nilai $h\nu$ pada $F(R) = 0$ yang merupakan nilai energi celah dari material (Torrent dan Baron, 2008).

2.13. SEM (*Scanning Electron Microscopy*)

SEM merupakan suatu mikroskop elektron yang menerapkan prinsip difraksi elektron, yang prinsip kerjanya sama dengan mikroskop optik. Pada SEM, lensa yang digunakan merupakan lensa elektromagnetik, yaitu kumparan medan magnet dan medan listrik yang dibuat dengan adanya tegangan tinggi sehingga elektron yang melewatinya dibelokkan seperti cahaya oleh lensa elektromagnetik tersebut.

Sebagai pengganti sumber cahaya digunakan suatu pemicu elektron (*electron gun*) yang berfungsi sebagai sumber elektron. SEM dapat

menyediakan suatu hasil gambar dari permukaan, dan memberikan pembesaran yang cukup tinggi, serta kedalaman medan yang cukup baik.

Panjang gelombang (λ) dari sumber cahaya yang digunakan untuk pencahayaan berpengaruh pada daya resolusi yang tinggi. Besarnya energi elektron (E) menentukan besarnya momentum (P) sesuai dengan rumus

$$P = (2mE)^{1/2}$$

Besarnya momentum menetapkan nilai panjang gelombang sesuai dengan persamaan de Broglie

$$\lambda = h / mv = h / p.$$

Pada SEM, sampel diletakkan di ruang vakum, dimana sebelumnya udara yang ada dipompa keluar, lalu suatu pemacu elektron akan memancarkan suatu sinar dari elektron berenergi tinggi. Sinar elektron ini turun melewati suatu lensa magnetik yang dibuat untuk memfokuskan elektron pada tempat yang tepat. Sinar elektron yang terfokus ini digerakkan ke seluruh permukaan sampel dengan menggunakan *deflection coil*. Sinar elektron ini mengenai setiap permukaan pada sampel, sehingga elektron sekunder yang dihantam, akan terlepas dari permukaan sampel. Suatu detektor kemudian mengumpulkan elektron sekunder tersebut dan mengubahnya menjadi suatu sinyal yang dikirim ke layar. Hasil gambar yang terbentuk ini disusun dari sejumlah elektron yang dipancarkan dari permukaan sampel tersebut (Mikrajuddin dan Khairurrijal, 2010).

2.14. Kromatografi gas

Kromatografi gas merupakan instrument yang menerapkan prinsip pemisahan berdasarkan perbedaan interaksi antara komponen sampel dengan fasa diam atau fasa gerak. Campuran komponen dibawa oleh fasa gerak yang berupa gas melewati fasa diam yang berupa padatan atau cairan. Pemisahan komponen-komponen dalam sampel terjadi karena perbedaan kecepatan migrasi masing-masing komponen.

Perbedaan kecepatan migrasi ini, dikarenakan perbedaan distribusi masing-masing komponen pada fasa diam dan fasa gerak. Interaksi antara sampel dengan fasa diam sangat menentukan waktu retensi yaitu waktu yang

dibutuhkan untuk menahan komponen pada fasa diam. Komponen dengan afinitas rendah terhadap fasa diam akan mempunyai waktu retensi yang singkat. Sedangkan komponen dengan afinitas yang lebih besar terhadap fasa diam akan mempunyai waktu retensi yang lebih lama.

Pada pengukuran hasil fotokatalis ini, digunakan *Flame Ionization Detector* (FID). Prinsip kerja detektor ini adalah ionisasi senyawa karbon pada nyala api, ionisasi ini menyebabkan arus ion yang dideteksi oleh dua elektroda yang muatannya berlawanan. Arus ion yang terjadi sebanding dengan jumlah atom karbon yang masuk dalam nyala api (Sunardi, 2008).

2.15. Metode BET

Metode pengukuran luas permukaan suatu padatan berpori dikembangkan oleh Brunauer, Emmet, dan Teller (1938). BET juga dapat digunakan untuk menentukan ukuran dan volume pori suatu padatan berpori. Dasar pengukuran BET adalah fisisorpsi gas N₂ pada permukaan padatan berpori (Mikrajuddin dan Khairurrijal, 2010).

Sejumlah sampel dimasukkan ke dalam tabung dan dipanaskan pada tekanan vakum untuk menghilangkan gas-gas yang terdapat pada sampel. Kemudian, tempat sampel didinginkan dengan nitrogen (77 K) dan sejumlah gas nitrogen dimasukkan ke dalam tabung tersebut. Setelah kesetimbangan tercapai, tekanan diukur dan diketahui volume sistem pada temperature dan volume yang ditambahkan setiap saat. Perbedaan antara tekanan hasil perhitungan dan tekanan yang diperoleh pada pengukuran di setiap titik akan dapat menentukan jumlah nitrogen yang diadsorpsi pada padatan berpori. Dengan mengekstrapolasi kurva dan menggunakan persamaan adsorpsi BET maka luas permukaan dapat ditentukan dengan (Mikrajuddin dan Khairurrijal, 2010):

$$\frac{P}{V(P_0 - P)} = \frac{1}{V_m c} + \frac{(c - 1)}{(V_m c)} \times \frac{P}{P_0}$$

Dengan P : tekanan

- V : volume gas yang dihasilkan pada tekanan P
 P_0 : tekanan jenuh (200-400 Torr)
 V_m : volume gas yang disdsorpsi pada lapisan monolayer
 C : konstanta BET

Metode multipoint BET menggunakan 3 titik pada berbagai tekanan relatif atau berat dari monolayer adsorbat, W_m didapatkan dari harga slope S , dan intersep I , pada persamaan linier BET

$$S = \frac{(C - 1)}{(W_m \times C)}$$

$$I = \frac{1}{(W_m \times C)}$$

Berat monolayer W_m didapatkan dengan mengkombinasikan kedua persamaan tersebut:

$$W_m = \frac{1}{(S + 1)}$$

Luas permukaan dari sampel didapatkan dari persamaan berikut:

$$S_1 = \frac{W_m \cdot N \cdot A_{cs}}{M}$$

- Dengan N : bilangan Avogrado $6,02 \times 10^{23}$ molekul
 M : berat molekul adsorbat
 A_{cs} : luas penampang molekul gas N_2 yaitu $16,2 \text{ \AA}$ pada 77 K

Luas permukaan spesifik S , dapat dihitung dari luas permukaan total S_1 , dan berat sampel W , dengan persamaan (Mikrajuddin dan Khairurrijal, 2010):

$$S = \frac{S_1}{W}$$

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1. Bahan dan Alat Penelitian

3.1.1. Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah titanium tetraisopropoksida 97 % v/v (Aldrich), etanol 95 % v/v (Merck), dietanolamin (Merck), polietilen glikol bobot molekul 1000 (Merck), formaldehida 37 % (PS Chemical).

3.1.2. Peralatan

Pada penelitian ini digunakan alat-alat gelas yang biasa digunakan di laboratorium. Pada proses pembuatan sol-gel TiO₂ digunakan pengaduk magnet (*magnetic stirrer*). Autoklaf dan oven digunakan pada proses pembuatan TiO₂ mesopori secara hidrotermal. Pada proses kalsinasi digunakan tanur, dan sebagai penyangga lapisan TiO₂ digunakan kaca preparat (25,4 mm x 76,2 mm x 1,2 mm). Karakterisasi TiO₂ mesopori hasil sintesis dilakukan dengan alat *X-Ray Diffraction (XRD)*, *Fourier Transform Infra Red (FTIR)*, *Brunauer-Emmet-Teller (BET)*, *Scanning Electron Microscopy (SEM)*, Spektrofotometer UV-Vis. Pada proses pengujian aktifitas fotokatalitik TiO₂ digunakan instrumen *Gas Chromatography (GC)* tipe Shimadzu 2010 dengan *Flame Ionization Detector (FID)* sebagai detektor, dengan kolom *Polyethylene Glycol (PEG 20 M)* support Shimalite W 60-80 mesh, serta alat reaktor yang terdiri dari tabung gelas, reservoir, flow meter, pompa vakum, serta ruang simulasi yang dilengkapi dengan lampu *black light* 10 w.

3.2. Prosedur Percobaan

3.2.1. Sintesis TiO₂ dengan Metode Hidrotermal

Sebanyak 2,625 g dietanolamin (DEA), 99 g etanol, dan 2,505 g Polietilene glikol bobot molekul 1000 (PEG 1000) dicampurkan dan diaduk

selama 2 jam pada suhu ruang. Kemudian 15,30 mL titanium tetra isoprosida (TTIP) ditambahkan setetes demi setetes ke dalam campuran tersebut dan diaduk selama 4 jam. Campuran yang diperoleh lalu dihidrolisis dengan 7,5 mL aquades yang ditambahkan setetes demi setetes. Campuran diaduk selama 24 jam pada suhu ruang, kemudian ditempatkan pada autoklaf dan dipanaskan pada suhu 120 °C selama 18 jam, sehingga akan didapatkan *slurry*. *Slurry* yang didapatkan kemudian dicuci dengan etanol dan air (1:10) lalu dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 8 jam. Serbuk TiO₂ yang didapatkan, dikarakterisasi dengan XRD untuk menentukan struktur kristal TiO₂, FTIR untuk mengetahui apakah PEG *template* telah hilang, BET untuk menentukan luas permukaan serta distribusi pori TiO₂, dan spektrofotometer UV-Vis untuk menentukan *band gap*, serta SEM untuk melihat morfologi permukaan dari serbuk TiO₂ yang terbentuk.

3.2.2. Immobilisasi Padatan TiO₂ pada Kaca Preparat

Sebanyak 0,5 g padatan TiO₂ hasil sintesis dilarutkan dalam 10 mL etanol 97 % kemudian disonikasi selama 15 menit. Kaca preparat dengan ukuran 1 x 1 cm dicelupkan kedalam suspensi tersebut, lalu dikeringkan dengan cara diangin-anginkan. Hasil immobilisasi pada kaca preparat lalu dicek morfologinya dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM).

3.2.3. Aplikasi TiO₂ Mesopori sebagai Fotokatalis

3.2.3.1. Immobilisasi TiO₂ pada Tabung Reaktor

Tabung gelas (id = 8 cm, p = 15 cm) dicuci dengan air lalu dicuci dalam larutan HNO₃ pekat, lalu dibilas aquades dan dikeringkan di oven pada suhu 100 °C. Sebanyak 0,5 g TiO₂ hasil sintesis disuspensikan dalam 10 mL etanol 97 % dan suspensi disonikasi selama 15 menit. Kemudian tabung gelas dilapisi dengan suspensi tersebut dan dipanaskan pada oven suhu 120 °C. Proses pelapisan diulangi hingga 4 kali. Tabung yang telah terlapisi dengan TiO₂ hasil sintesis kemudian dikalsinasi pada suhu 400 °C selama 2 jam.

3.2.3.2. Reaktor Fotokatalisis

Pada penelitian ini digunakan *batch reactor* (Lampiran 2) sebagai tempat berlangsungnya reaksi fotokatalitik antara polutan organik dengan TiO_2 mesopori hasil sintesis. *Batch reactor* yang digunakan berupa tabung gelas ($d = 8 \text{ cm}$ $p = 15 \text{ cm}$) yang dilengkapi dengan tutup karet kedap udara. *Batch reactor* ini ditempatkan dalam suatu reaktor yang dilengkapi dengan lampu UV sebagai sumber foton. Dengan memanaskan senyawa formaldehida dalam *batch reactor* maka akan didapatkan uap formaldehida. Uap formaldehida tersebut kemudian diuji proses degradasinya terhadap kondisi fotolisis, katalisis, fotokatalisis dan kontrol

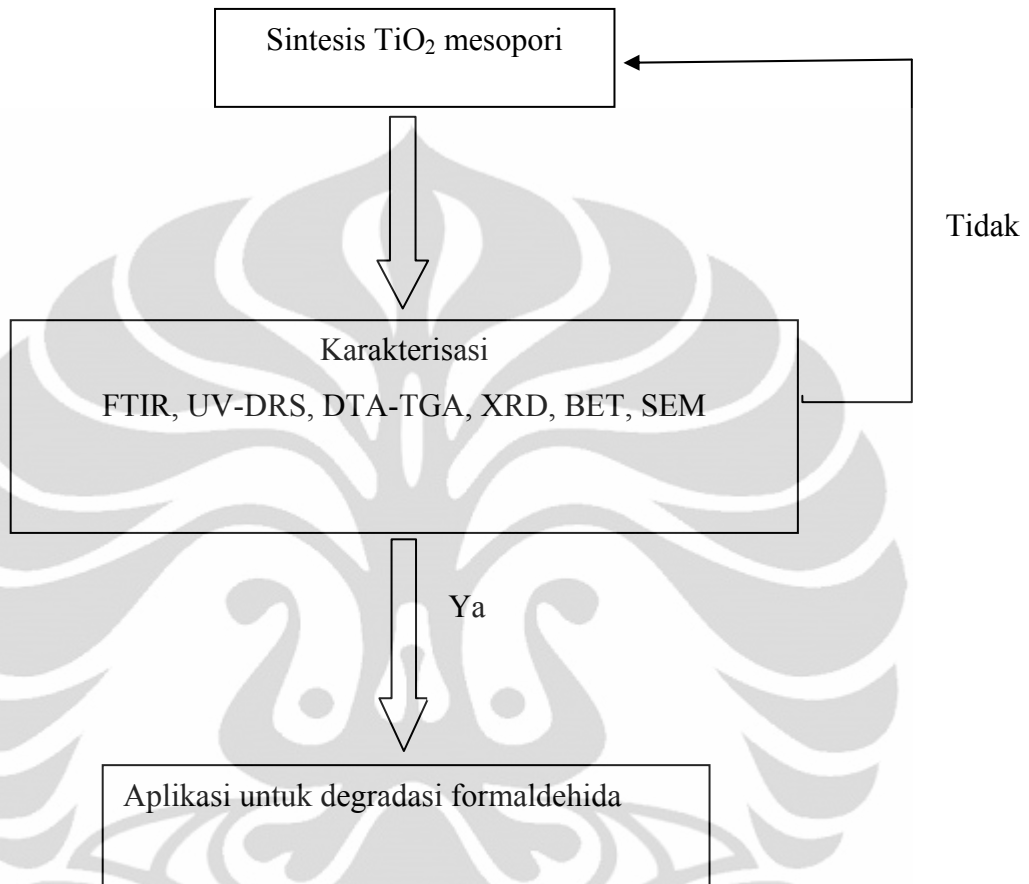
3.2.3.3. Degradasi Formaldehida dengan TiO_2 Mesopori

Dilakukan pengukuran terhadap hasil degradasi larutan formaldehida 1 % dalam reaktor fotokatalitik. Sebanyak 1 mL larutan formaldehida 1 % ditempatkan dalam *batch reactor* lalu dipanaskan sehingga terbentuk uap jenuhnya. Uap yang terbentuk diambil sebanyak 1 mL lalu diinjeksikan ke kromatografi gas untuk dianalisis konsentrasi awalnya. Selanjutnya dilakukan pengambilan sampel uap formaldehida dilakukan setiap 10 menit selama 150 menit.

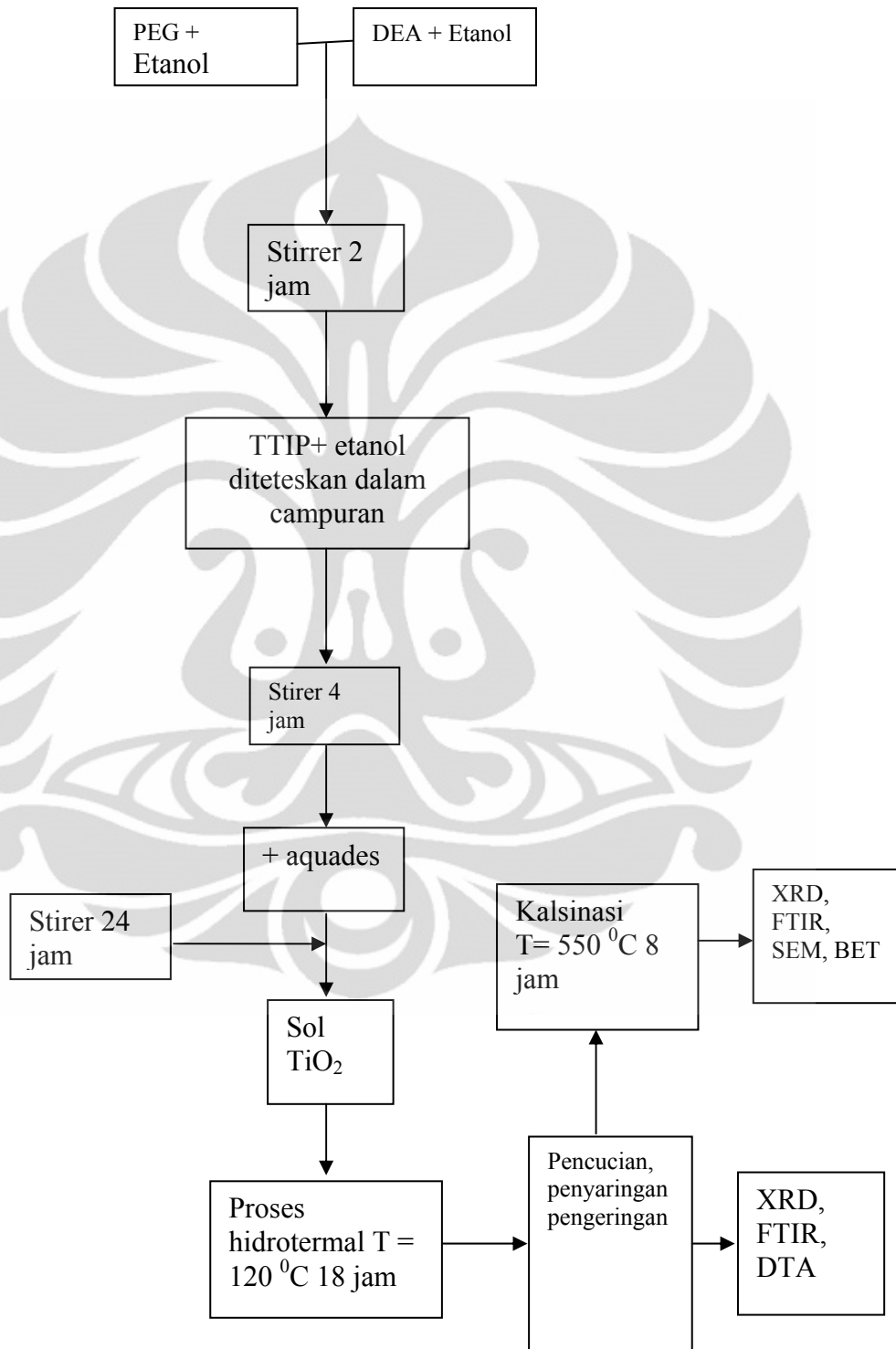
Pengukuran dilakukan dengan 4 kondisi berbeda, yaitu:

- Fotolisis : formaldehida tanpa TiO_2 , lampu UV black light menyala
- Katalisis : formaldehida dengan TiO_2 , lampu UV black light tidak menyala
- Fotokatalisis : formaldehida dengan TiO_2 , lampu UV black light menyala
- Kontrol : formaldehida tanpa TiO_2 , lampu UV black light tidak menyala

3.2.3.4. Diagram Alur Penelitian



3.2.3.4. Diagram Sintesis TiO₂ Mesopori



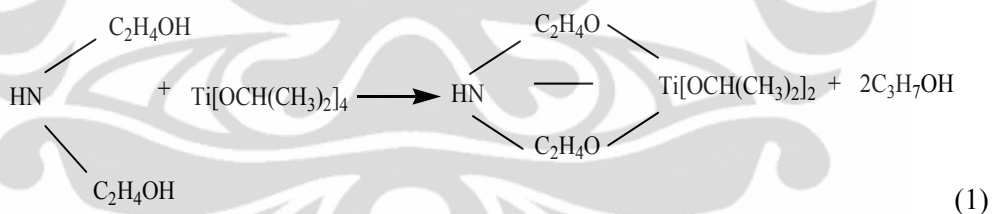
BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1. Hasil Sintesis dengan Metode Hidrotermal

Titanium dioksida mesopori dipreparasi dengan mereaksikan titanium isopropoksida (TTIP), polietilen glikol dengan bobot molekul 1000 (PEG 1000), dietanolamin (DEA), dan etanol. TTIP digunakan sebagai prekursor titania, etanol berfungsi sebagai pelarut, dan PEG 1000 digunakan sebagai *template*, sementara dietanolamin berfungsi sebagai *complexing agent*.

Proses sintesis dimulai dengan melarutkan PEG 1000 dan dietanolamin ke dalam etanol. Hal ini bertujuan agar campuran PEG 1000 dan dietanolamin lebih homogen. Dietanolamin sebagai *complexing agent* berfungsi untuk mengontrol laju hidrolisis dan kondensasi dari TTIP, karena proses hidrolisis TTIP yang terlalu cepat, akan mengakibatkan porositas dan pembentukan pori yang rendah (Bu et al., 2005) Reaksi pembentukan kompleks yang terjadi antara DEA dan TTIP yaitu (Bu et al., 2005):



Berdasarkan penelitian Bu, et al. (2005), urutan kemampuan *complexing agent* membentuk kompleks dengan prekursor adalah asam sitrat > asetil aseton > trietanol amin > dietanol amin > asam asetat glasial > etanol amin. Namun, kemampuan *complexing agent* untuk membentuk struktur pori TiO₂ yaitu, dietanol amin > trietanol amin > asetilaseton > asam sitrat > asam asetat glasial > etanol amin.

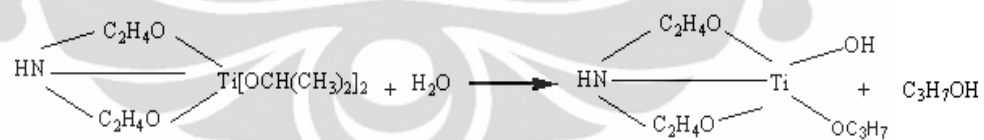
Polietilen glikol yang berfungsi sebagai *template* juga ikut mempengaruhi pembentukan struktur pori TiO₂. Semakin banyak jumlah PEG serta semakin besar bobot molekulnya akan menyebabkan ukuran pori yang terbentuk semakin besar (Bu et al., 2005). Setelah campuran PEG, DEA, dan

etanol menjadi homogen, kemudian dilakukan penambahan TTIP. Setelah itu, campuran diaduk kembali selama 4 jam, untuk menambah homogenitas dan mempercepat reaksi. Kemudian dilakukan proses hidrolisis dengan penambahan air setetes demi setetes, lalu didiamkan dengan pengadukan selama 24 jam. Hasil yang didapat berupa sol TiO_2 yang berwarna putih susu, seperti yang diperlihatkan pada gambar 4.1



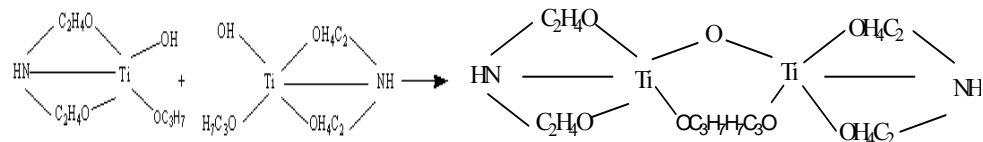
Gambar 4.1 Sol TiO_2

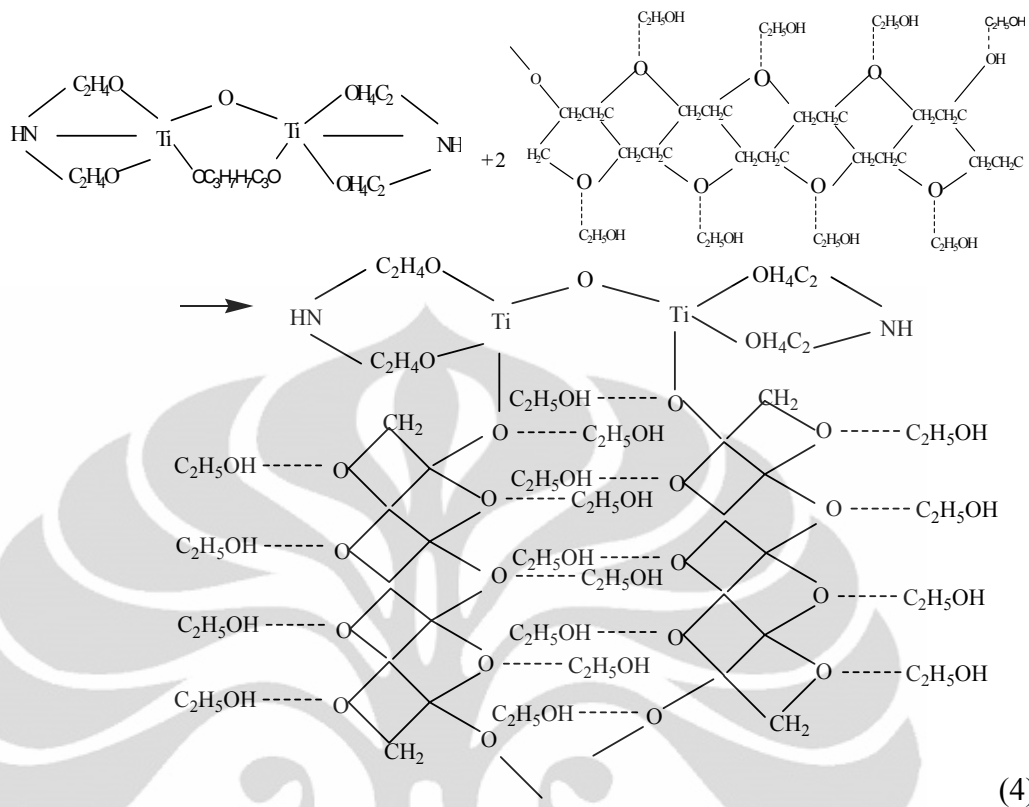
Reaksi hidrolisis yang terjadi, yaitu (Bu et al., 2005):



(2)

Reaksi polikondensasi yang terjadi, yaitu (Bu et al., 2005):





Sol tersebut kemudian ditempatkan di dalam autoklaf, dan dipanaskan pada suhu $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 18 jam, untuk selanjutnya dilakukan proses hidrotermal. Proses hidrotermal bertujuan untuk meningkatkan kristalinitas dari TiO_2 mesopori. Proses ini akan menyebabkan interaksi antar reaktan menjadi sempurna, dan pembentukan inti kristal berlangsung optimal, sehingga produk yang didapat bersifat kristalin.



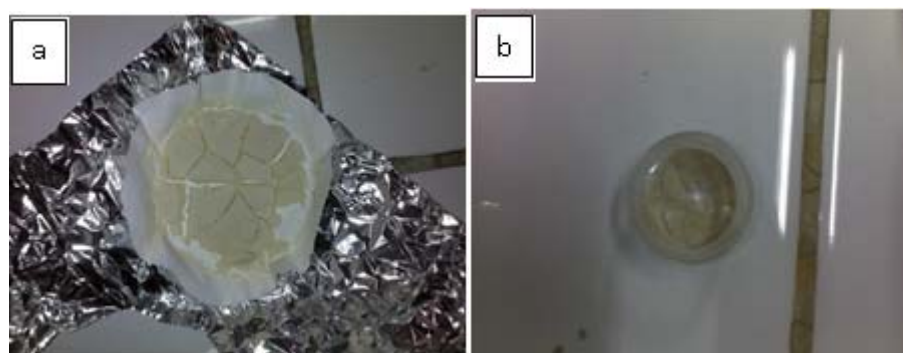
Gambar 4.2 Alat Autokklaf

Setelah melalui proses hidrotermal, hasil sintesis yang didapatkan berupa *slurry*, yang berwarna putih kecoklatan, yang terpisah dari cairan supernatannya, seperti diperlihatkan pada Gambar 4.3



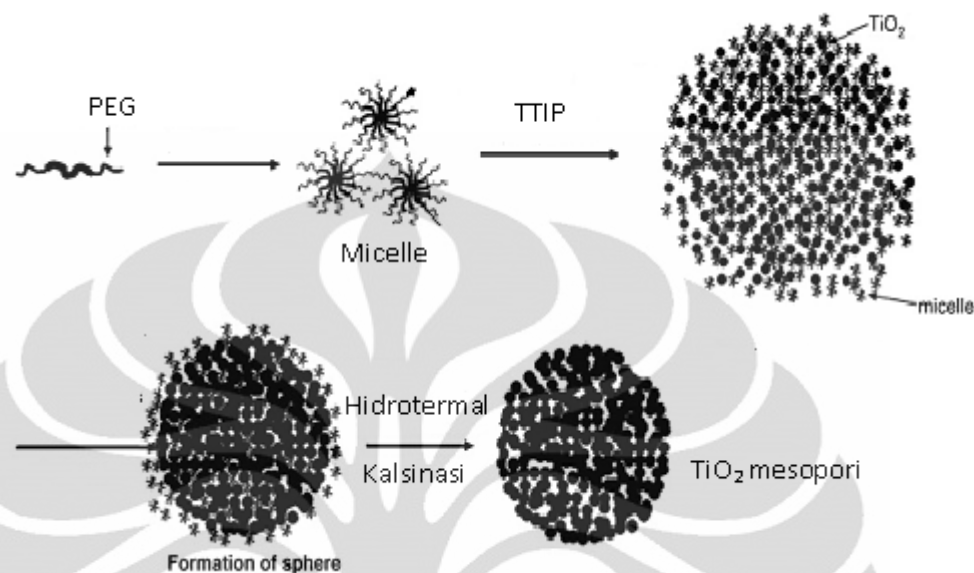
Gambar 4.3 *Slurry* TiO₂

Hasil tersebut kemudian dicuci dengan campuran etanol-air dengan perbandingan 10:1 (v/v), lalu disaring dan dikeringkan pada suhu kamar. Proses pencucian bertujuan untuk menghilangkan sisa reagen yang berada di luar kerangka TiO₂. Padatan yang didapat kemudian dikalsinasi di dalam *furnace* selama 8 jam pada suhu 550 °C. Kalsinasi bertujuan untuk menghilangkan *template* PEG yang terjebak pada rongga TiO₂ sehingga akan menghasilkan struktur pori. Kalsinasi juga bertujuan untuk mengubah fasa TiO₂ sintesis dari fasa amorf menjadi kristal anatase (Qinghong Zhang dan Lian, 2000). Hasil sintesis kemudian dikarakterisasi, untuk mengetahui struktur kristalnya.



Gambar 4.4 Hasil Sintesis a)Sebelum Kalsinasi b) Setelah Kalsinasi

Secara singkat proses pembentukan TiO₂ mesopori dapat digambarkan sebagai berikut:

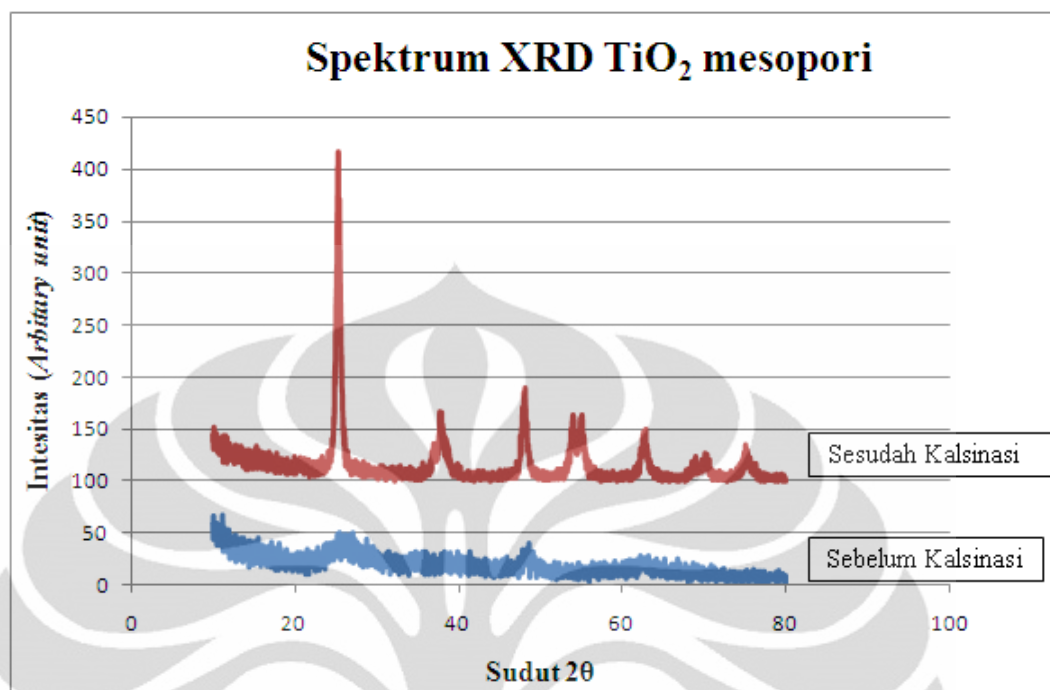


Gambar 4.5 Proses Pembentukan TiO₂ Mesopori
(modifikasi Kim dan Kwak, 2007)

Solvasi polietilen glikol dengan etanol akan menghasilkan *micelle*, selanjutnya dengan adanya penambahan prekursor TTIP ke dalam campuran PEG dengan etanol akan menyebabkan partikel TiO₂ terikat pada sisi hidrofilik dari polietilen glikol. Proses aging disertai dengan pengadukan selama 24 jam akan menyebabkan pembentukan agregat (*sphere formation*). Selanjutnya, dengan adanya proses hidrotermal dan kalsinasi akan menghasilkan kerangka mesopori pada partikel TiO₂.

4.1.1. Karakterisasi XRD

Karakterisasi XRD dilakukan untuk mengetahui struktur dan ukuran kristal TiO₂, dengan membandingkan nilai sudut difraksi (2θ) dan harga d antara hasil sintesis dengan standar TiO₂. Pada penelitian ini dilakukan karakterisasi XRD padatan TiO₂ hasil sintesis sebelum kalsinasi dan setelah kalsinasi pada suhu 550 °C selama 8 jam. Hasil yang didapat pada Gambar 4.6, yaitu:



Gambar 4.6 Pola Difraksi TiO₂ Mesopori Sebelum dan Sesudah kalsinasi

Perbandingan antara nilai sudut difraksi TiO₂ standar anatase dan rutil dengan TiO₂ mesopori hasil sintesis dapat dilihat pada Tabel 4.1.

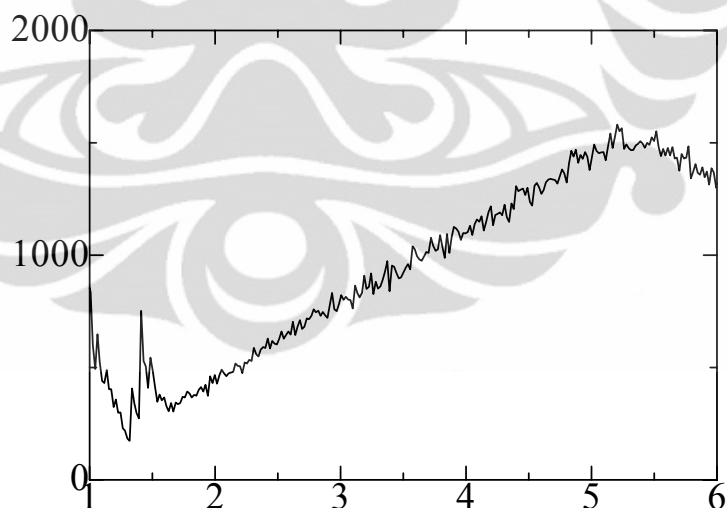
Tabel 4.1 Data Difraksi TiO₂ Standar dengan TiO₂ Mesopori

Puncak	Standar anatase		Standar rutil		Hasil sintesis	
	2θ(deg)	I relatif (%)	2θ(deg)	I relatif (%)	2θ (deg)	I relatif (%)
1	25	100	-	-	25	100
2	38	19	-	-	38	20
3	48	28	-	-	48	35
4	54	19	-	-	54	20
5	55	19	-	-	55	20
6	63	13	-	-	63	13
7	-	-	69	20	69	5
8	-	-	70	12	70	6

Hasil karakterisasi padatan TiO_2 mesopori sebelum kalsinasi menunjukkan sedikit puncak pada sudut difraksi 25° , 37° , dan 62° . Namun pola difraksi yang ada belum teratur, hal ini menunjukkan bahwa padatan TiO_2 mesopori masih berada dalam fase amorf. Setelah dikalsinasi, teramati delapan puncak pada sudut difraksi 20° sampai 80° . Berdasarkan pola difraksi untuk hasil setelah kalsinasi menunjukkan bahwa enam puncak merepresentasikan fasa kristal anatase sementara dua puncak lainnya merepresentasikan fasa rutil. Berdasarkan data pada Tabel 4.1, maka dapat terlihat bahwa fasa TiO_2 hasil sintesis setelah proses kalsinasi, sebagian besar memiliki fasa kristal anatase dengan sedikit fasa rutil.

4.1.2. Karakterisasi XRD *low angle*

Untuk mengetahui, karakter mesopori hasil sintesis dilakukan analisis dengan XRD pada daerah *low angle* yaitu dengan sudut 2θ kurang dari 10° . Hasil analisis yang didapat dapat dilihat pada gambar 4.7



Gambar 4.7 Spektrum XRD *Low Angle*

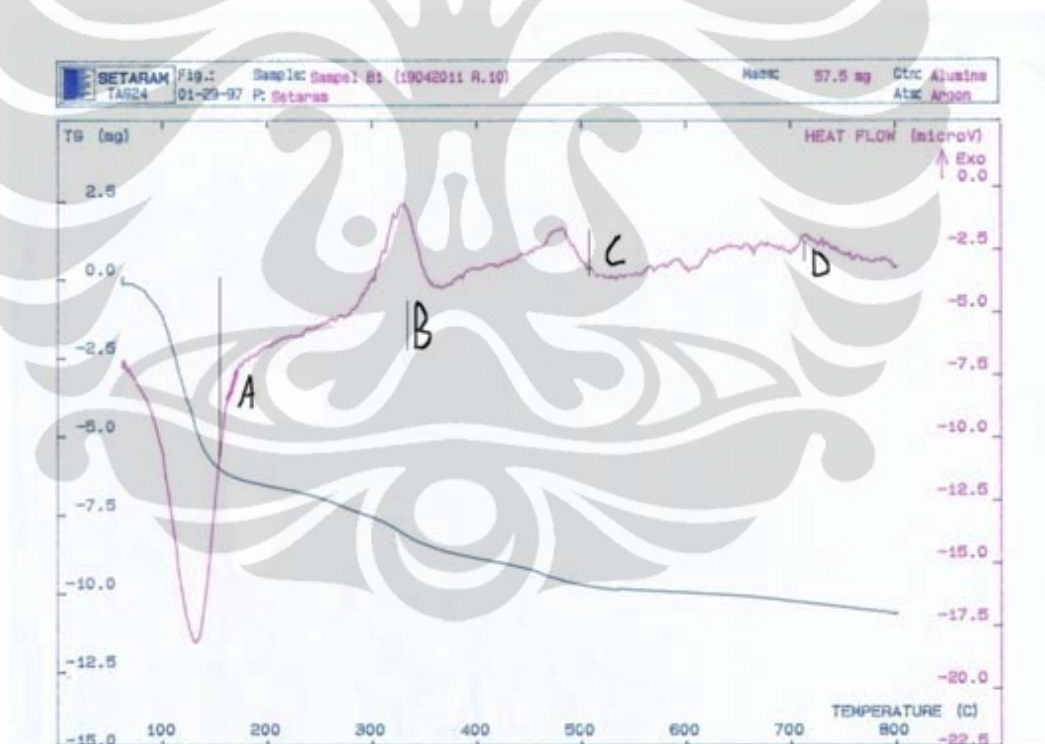
Berdasarkan Gambar 4.7, dapat dilihat adanya puncak pada sudut 2θ sekitar $1,5^\circ$ sampai $1,6^\circ$, yaitu pada sudut $1,53^\circ$ ($d = 57 \text{ \AA}$), $1,60^\circ$ ($d = 55 \text{ \AA}$), serta $1,68^\circ$ ($d = 53 \text{ \AA}$). Adanya puncak pada daerah tersebut merupakan

karakter yang khas untuk material mesopori (Du et al., 2005) Dari Gambar 4.7 juga terlihat adanya puncak pada sudut $5,4^\circ$ ($d = 16 \text{ \AA}$), puncak pada daerah tersebut merupakan karakter mesopori untuk struktur *lamellar* (Peters, 2004).

Keberadaan puncak-puncak difraksi tersebut menunjukkan bahwa TiO_2 hasil sintesis memiliki struktur kristal anatase dengan sedikit fasa rutil sebagai pengotor (pola difraksi XRD *wide angle*) serta karakteristik mesopori dengan struktur *lamellar* (pola difraksi XRD *low angle*).

4.1.3. Karakterisasi DTA-TGA

Karakterisasi DTA-TGA dilakukan untuk mengetahui transformasi fasa pada sampel TiO_2 . Hasil analisis DTA-TGA untuk TiO_2 mesopori dapat dilihat pada Gambar 4.8.



Gambar 4.8 Spektrum DTA-TGA TiO_2 Mesopori

Analisis DTA-TGA terhadap hasil sintesis dilakukan untuk mengetahui temperatur saat terjadi perubahan struktur TiO_2 hasil sintesis dari fasa amorf menjadi anatase, sehingga dapat diketahui suhu yang sesuai untuk proses kalsinasi. Dari hasil analisis DTA-TGA juga dapat diketahui suhu saat terjadi proses penghilangan *template* polietilen glikol.

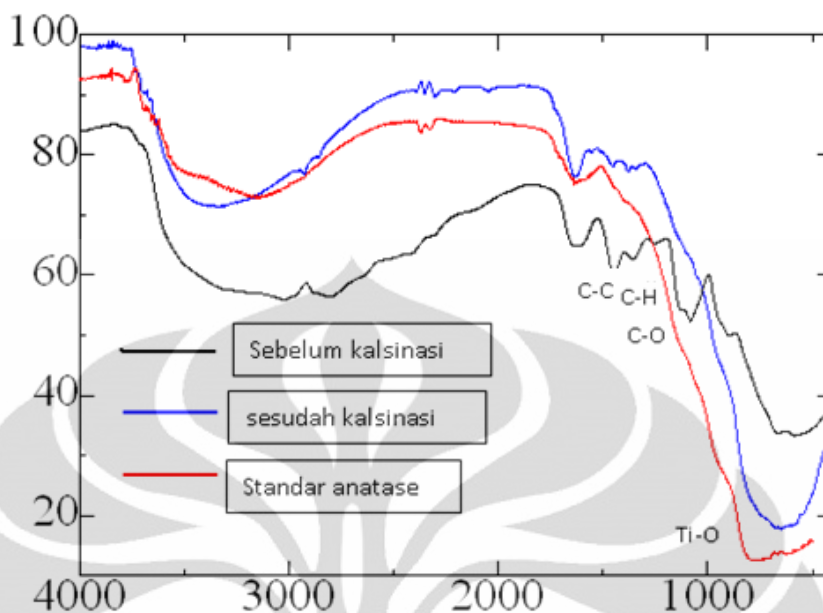
Berdasarkan hasil analisis DTA-TGA pada gambar 4.8 dapat dilihat bahwa proses penghilangan air (A) sebesar 11 % (w/w) terjadi pada suhu 150 °C, sementara itu, proses penghilangan *template* polietilen glikol (B) sebesar 4 % mulai terjadi pada suhu 320 °C. Pada suhu 480 °C (C) terjadi perubahan fasa TiO₂ hasil sintesis dari fasa amorf menjadi anatase. Oleh karena itu, proses kalsinasi dilakukan pada suhu 550 °C agar proses kalsinasi lebih sempurna dan TiO₂ hasil sintesis memiliki bentuk kristal anatase.

Dari hasil analisis DTA-TGA juga dapat diketahui transformasi TiO₂ hasil sintesis dari fasa anatase menjadi rutil terjadi pada suhu 700 °C (D). Oleh karena itu, proses kalsinasi tidak melebihi suhu tersebut karena struktur TiO₂ akan rusak dan terjadi perubahan kristal menjadi struktur rutil. Proses kalsinasi sebaiknya dilakukan pada suhu 500 °C – 650 °C, karena jika dilakukan di bawah suhu 500 °C dikhawatirkan masih terdapat sisa *template* polietilen glikol dan belum terbentuk struktur kristal anatase. Sedangkan jika proses kalsinasi dilakukan pada suhu di atas 650 °C, dikhawatirkan terdapat sebagian kristal TiO₂ yang berubah menjadi bentuk rutil.

Berdasarkan data DTA-TGA pada Gambar 4.8, terlihat bahwa proses penghilangan *template* berjalan lambat hingga pada suhu 530 °C, masih terjadi proses penghilangan *template*. Pemutusan ikatan PEG pada suhu tersebut, menyebabkan adanya pembebasan energi yang dapat dimanfaatkan untuk mengubah sebagian fasa anatase menjadi rutil. Hal ini dibuktikan dengan adanya dua puncak fasa rutil pada spektrum XRD.

4.1.4. Karakterisasi FTIR

Hasil sintesis sebelum dan sesudah kalsinasi dianalisis dengan FTIR untuk mengidentifikasi gugus-gugus fungsi yang terdapat pada material TiO₂ hasil sintesis. Berdasarkan spektrum IR juga dapat diketahui keberadaan *template* pada TiO₂ mesopori sebelum dan sesudah proses kalsinasi. Spektrum IR untuk TiO₂ mesopori sebelum dan sesudah proses kalsinasi serta standar anatase dapat dilihat pada Gambar 4.9



Gambar 4.9 Spektrum FTIR TiO₂ Mesopori

Berdasarkan Gambar 4.9 dapat terlihat bahwa sebelum dilakukan proses kalsinasi, masih terdapat *template* polietilen glikol pada hasil sintesis. Hal ini terlihat adanya pita serapan untuk ikatan C-C, C-H, serta C-O pada bilangan gelombang 1400 hingga 1030 cm⁻¹. Adanya proses kalsinasi akan menghilangkan *template* polietilen glikol sehingga akan menghasilkan kerangka mesopori pada TiO₂.

Berdasarkan hasil spektrum FTIR untuk sampel setelah proses kalsinasi, dapat dilihat bahwa keberadaan pita serapan untuk gugus organik, sudah hilang. Setelah proses kalsinasi, hanya terlihat pita serapan untuk O-H (*broad band*) pada bilangan gelombang 3300 cm⁻¹, O-H (*weak band*) pada 1600 cm⁻¹, serta pita serapan untuk ikatan Ti-O pada 600 – 400 cm⁻¹. Hal ini menandakan bahwa setelah proses kalsinasi, *template* polietilen glikol sudah hilang.

Pada Gambar 4.9, teramati bahwa pita serapan untuk ikatan C-C, C-H, dan C-O *stretching* pada sampel sebelum proses kalsinasi, tidak terlihat dengan jelas. Hal ini disebabkan adanya intensitas serapan yang besar untuk

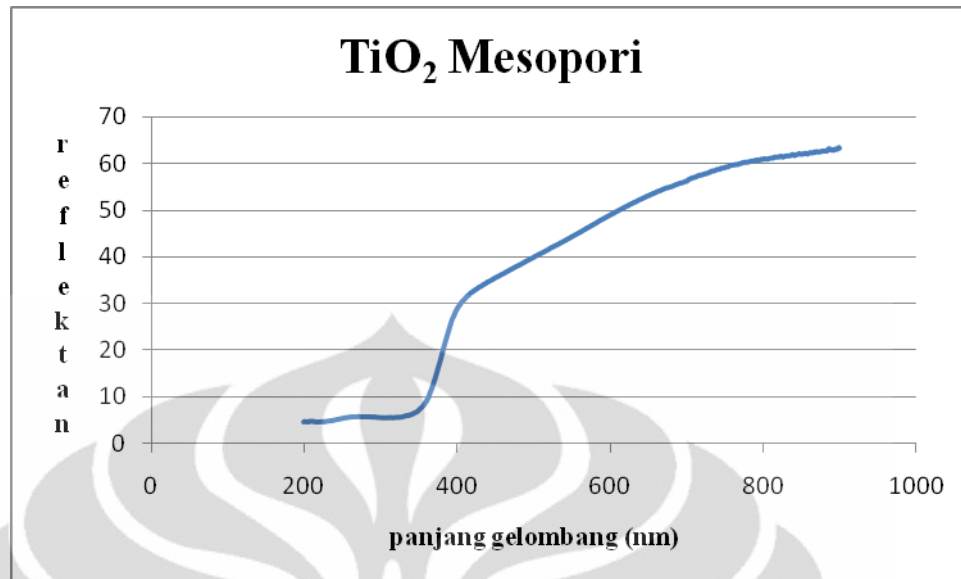
ikatan O-H *stretching* yang berasal dari pelarut polar etanol dan air, sehingga menyebabkan pita serapan ikatan C-C, C-H dan C-O *stretching* tidak teramati.

Spektrum FTIR untuk TiO₂ mesopori setelah proses kalsinasi, juga memiliki nilai pita serapan yang mirip seperti spektrum FTIR untuk TiO₂ standar anatase yang terlihat pada gambar 4.9

4.1.5. Karakterisasi UV-Diffuse Reflectance

Karakterisasi UV-Diffuse Reflectance dilakukan untuk mengetahui nilai celah pita energi (*energy band gap*) TiO₂ mesopori. Titanium dioksida merupakan material semikonduktor. Secara umum, material semikonduktor memiliki dua buah pita energi, yaitu pita valensi dan pita konduksi. Diantara pita valensi dan pita konduksi tersebut, terdapat celah pita energi. Celah pita energi semikonduktor TiO₂ memiliki nilai antara 3,0 sampai 3,2 eV.

Karakterisasi UV- Diffuse Reflectance untuk pengukuran celah pita energi pada TiO₂ mesopori dilakukan dengan memberikan energi dari panjang gelombang 200 – 900 nm. Jika elektron pada pita valensi menyerap energi foton yang sesuai, maka elektron tersebut akan tereksitasi ke pita konduksi. Saat kembali ke keadaan dasarnya, elektron tersebut akan mentransmisikan sejumlah energi. Energi yang ditransmisikan oleh material akan sebanding dengan lebar celah pita energi. Berdasarkan hasil pengukuran UV-Vis, didapatkan grafik Gambar 4.10 antara panjang gelombang dengan energi yang direfleksikan.



Gambar 4.10 Grafik Panjang Gelombang terhadap Reflektan

Berdasarkan persamaan Kubelka-Munk

$$F(R) = K/S = (1-R)^2/2R$$

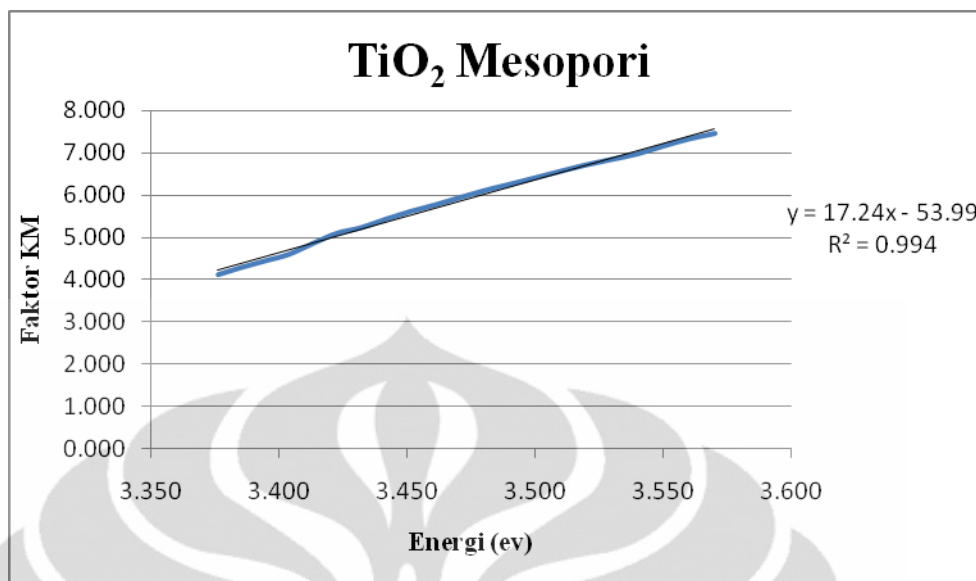
Dimana nilai

- F(R) = faktor Kubelka-Munk
- K = koefisien absorpsi
- S = koefisien *scattering*
- R = nilai reflektan

Dan nilai

$$F(R) = A(h\nu - E_g)^{m2}$$

Dengan mengalurkan nilai F(R) terhadap $h\nu$ yang merupakan panjang gelombang yang diberikan, dan mengambil daerah liniernya, maka didapatkan grafik Gambar 4.11



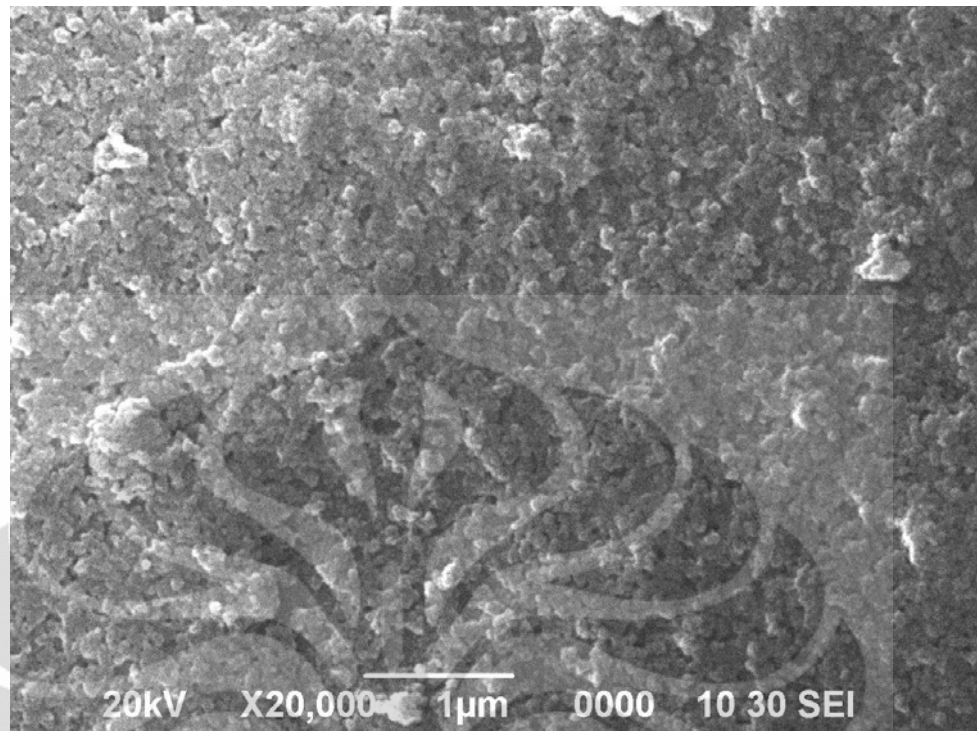
Gambar 4.11 Grafik Energi terhadap Faktor KM

Dari persamaan garis $y = 17,24 x - 53,99$ diperoleh nilai x saat $y = 0$, yaitu $x = 3,13$ eV, yang merupakan nilai celah pita energi TiO₂ mesopori. Nilai tersebut sedikit lebih rendah dari nilai standar celah energi untuk standar anatase yaitu 3,2 eV. Hal ini disebabkan karena fasa kristal TiO₂ hasil sintesis tidak seluruhnya berupa fasa anatase, melainkan terdapat sebagian kecil fasa rutil, sehingga menyebabkan nilai energi celah TiO₂ hasil sintesis menjadi sedikit lebih kecil dibandingkan standar anatasenya.

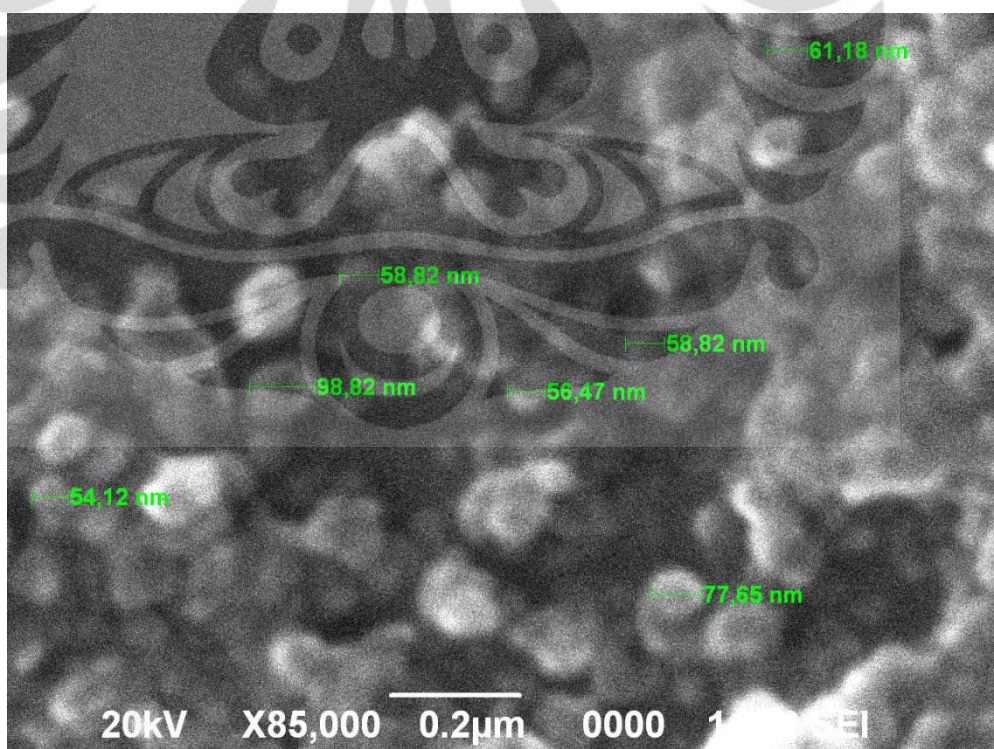
4.1.6. Karakterisasi SEM

Karakterisasi dengan SEM dilakukan untuk mengetahui morfologi permukaan sampel TiO₂ mesopori. Karakterisasi dengan SEM dilakukan untuk lapisan tipis sampel yang telah diimobilisasi pada kaca preparat. Karakterisasi dengan SEM memerlukan permukaan yang bersifat konduktif, sehingga sebelum dikarakterisasi dengan SEM, lapisan sampel tersebut disalut dengan platina sehingga permukaan sampel menjadi bersifat konduktif.

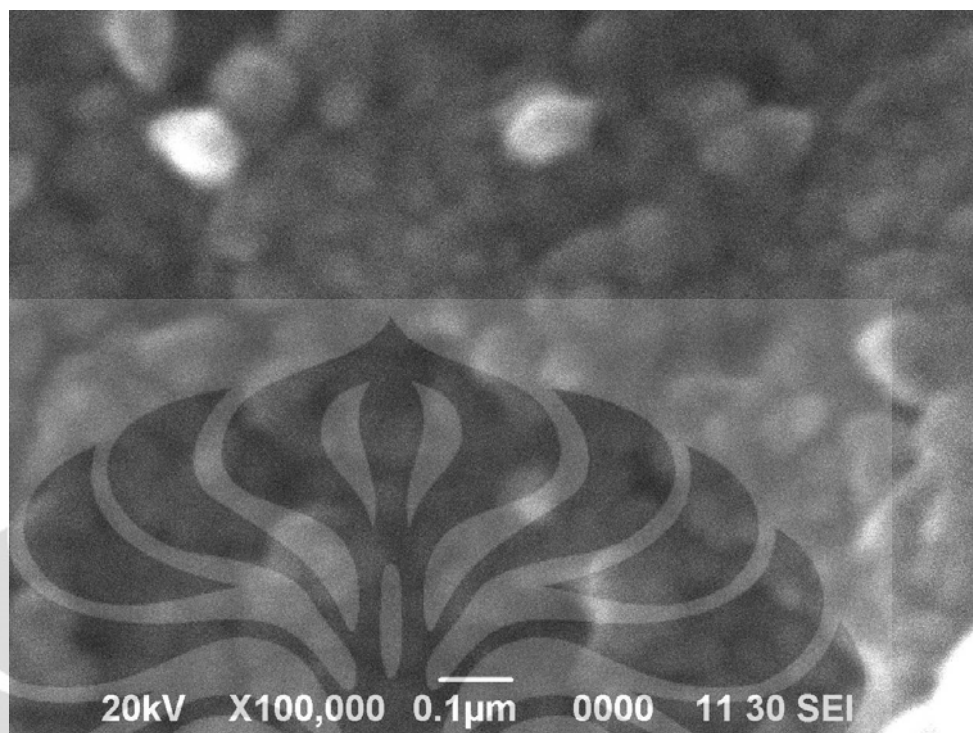
Hasil karakterisasi dengan SEM dengan perbesaran 20.000, 85.000 dan 100.000 kali dapat dilihat pada Gambar 4.12, 4.13, dan 4.14.



Gambar 4.12 SEM TiO₂ Mesopori Perbesaran 20.000 kali



Gambar 4.13 SEM TiO₂ Mesopori Perbesaran 85.000 kali

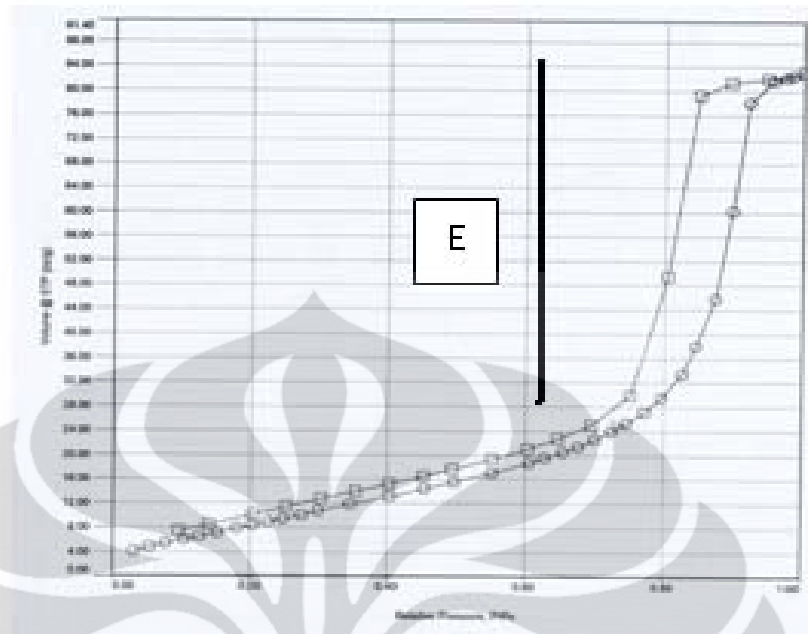


Gambar 4.14 SEM TiO₂ Mesopori Perbesaran 100.000 kali

Berdasarkan Gambar 4.12, terlihat bahwa lapisan TiO₂ yang terbentuk tidak rata. Hal ini disebabkan saat proses immobilisasi sampel pada kaca preparat tidak terlapsi dengan sempurna, sehingga lapisan tipis yang didapat tidak merata. Berdasarkan Gambar 4.13 dan 4.14 terlihat bahwa partikel TiO₂ berbentuk bulat (*spherical*) dengan diameter kurang dari 0,1 μm, yang berkisar antara 50 – 90 nm. Dari gambar tersebut juga terlihat bahwa partikel-partikel TiO₂ saling berdekatan membentuk agregat yang irregular bentuknya.

4.1.7. Karakterisasi BET

Analisis BET dilakukan untuk mengetahui luas permukaan, diameter serta volume pori TiO₂ mesopori hasil sintesis. Pola isoterm adsorpsi TiO₂ mesopori dapat dilihat pada Gambar 4.15



Gambar 4.15 Isotherm Adsorpsi Nitrogen TiO₂ Mesopori

Dari Gambar 4.15, dapat dilihat adanya *hysteresis loop* (E) pada hasil isotherm adsorpsi sampel, pada P/P_0 0,9 sampai 0,7. *Hysteresis loop* tersebut merupakan karakter yang khas untuk material mesopori, sehingga adanya *hysteresis loop* tersebut menandakan bahwa hasil sintesis merupakan material mesopori.

Berdasarkan hasil analisa BET, didapatkan data luas permukaan, volume pori, dan diameter pori rata-rata. Data tersebut dapat dilihat pada Tabel 4.2

Tabel 4.2 Data luas permukaan serta volume pori

Luas Permukaan (m ² /g)	Volume pori (cm ³ /g)	Diameter pori (nm)
35,56	0,13	7,23

Berdasarkan data diameter pori, maka diketahui bahwa sampel termasuk material mesopori dengan ukuran diameter pori antara 2- 50 nm. Hal ini juga diperkuat dengan adanya *hysteresis loop* pada data isotherm adsorpsi pada analisis BET yang merupakan karakter bagi material mesopori. Hal ini

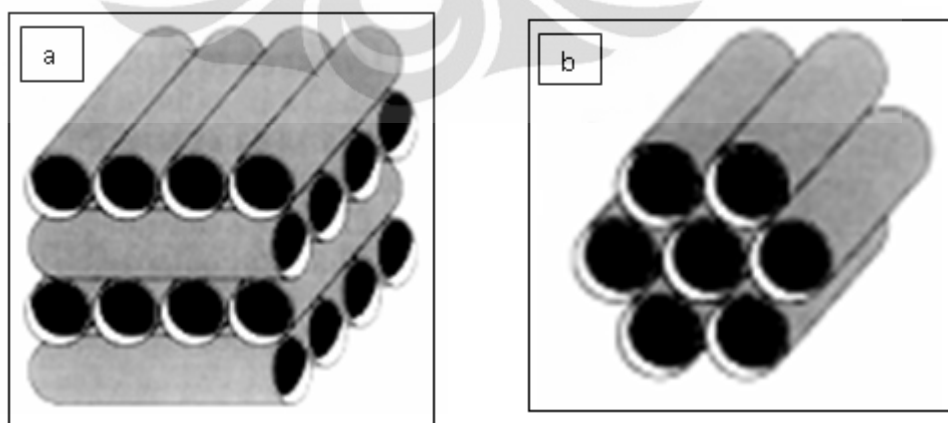
dikarenakan *hysteresis loop* hanya akan muncul pada material yang memiliki diameter pori lebih dari 4 nm (Corma, 1997). Oleh karena itu, maka dapat disimpulkan bahwa TiO₂ yang disintesis termasuk material mesopori.

Efek *hysteresis loop* muncul sebagai akibat laju adsorpsi N₂ tidak sama dengan laju desorpsi N₂. Hal ini dikemukakan oleh Kelvin, yang menyatakan bahwa tekanan uap pada permukaan yang cekung, berbeda dengan tekanan uap pada permukaan yang datar. Oleh karena itu, sebagai akibatnya laju desorpsi pada pori-pori akan berbeda dari laju adsorpsinya (Peters, 2004).

Berdasarkan hasil analisis BET didapatkan data luas permukaan yang rendah, kurang dari 55 m²/g, yaitu sebesar 35,56 m²/g. Hasil ini juga lebih rendah dibandingkan hasil yang didapat pada penelitian Bu et al. (2005), dengan luas permukaan sebesar 72 m²/g.

Luas permukaan yang rendah dapat disebabkan material yang terbentuk tidak berstruktur *hexagonal packed* melainkan berstruktur *lamellar*. Hal ini dibuktikan dengan hasil karakterisasi XRD pada daerah *low angle*, yaitu adanya puncak pada sudut 5,41⁰ yang merupakan karakteristik untuk struktur *lamellar*.

Lamellar merupakan struktur material yang tidak stabil, dengan keberadaan lapisan bilayer surfaktan atau polimer, yang akan runtuh jika lapisan surfaktan atau polimer tersebut dihilangkan (Corma, 1997). Struktur *hexagonal packed* dan *lamellar* dapat dilihat pada Gambar 4.16.



Gambar 4.16 a) Struktur “lamellar” b) Struktur “hexagonal packed” (Corma, 1997)

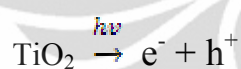
Luas permukaan yang rendah, dapat pula disebabkan *template* polietilen glikol belum terdegradasi sempurna sehingga masih terdapat pori-pori material yang tertutup oleh karbon sehingga luas permukaan TiO₂ menjadi rendah.

Berdasarkan hasil karakterisasi yang telah dilakukan, maka dapat disimpulkan bahwa material TiO₂ hasil sintesis mempunyai karakter mesopori dengan struktur *lamellar*, dengan tipe kristal fasa anatase dan sedikit campuran rutil sebagai pengotor, dan nilai energi celah sebesar 3,13 eV.

4.2. Aplikasi Fotokatalis TiO₂

Aktivitas TiO₂ mesopori diamati melalui proses degradasi gas formaldehida secara fotokatalisis. Dengan menganalisis hasil degradasi formaldehida dengan kromatografi gas, maka dapat diketahui aktivitas fotokatalitik TiO₂ hasil sintesis. Pada percobaan ini digunakan *batch reactor* berupa tabung gelas. Kondisi pengukuran dilakukan dengan keadaan bagian dalam tabung terlapis TiO₂ (fotokatalisis) dan tanpa lapisan TiO₂ (fotolisis) dengan lampu UV menyala. Dilakukan pula kontrol dengan kondisi tanpa lampu UV dengan bagian dalam tabung terlapis TiO₂ (katalisis) serta tanpa lapisan TiO₂ (blanko).

Reaksi degradasi formaldehida secara fotokatalitik dapat dituliskan secara berikut (Noguchi et al., 1998):



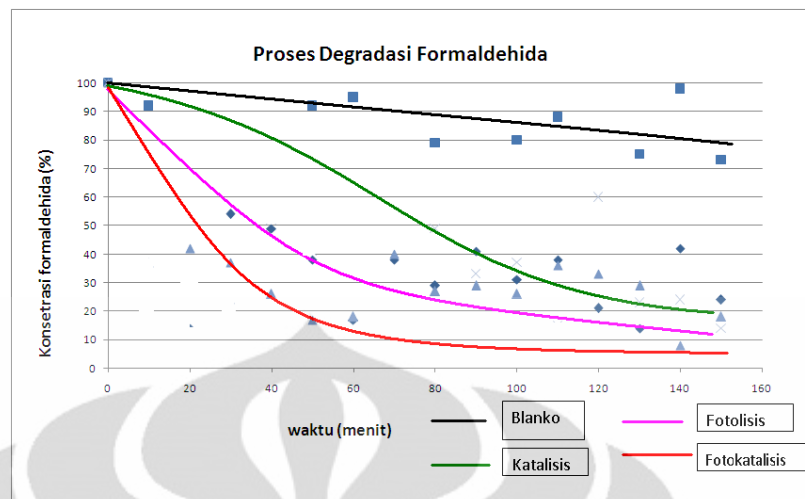
Oksidasi



Reduksi



Berdasarkan percobaan, diperoleh grafik proses fotolisis dan fotokatalisis sebagai berikut



Gambar 4.17 Proses degradasi formaldehida

Pada Gambar 4.17 terlihat bahwa penurunan konsentrasi formaldehida paling cepat terjadi pada proses fotokatalisis dengan konsentrasi sisa formaldehida sebesar 26 % pada menit ke-40 . Hal ini membuktikan bahwa TiO_2 mesopori hasil sintesis bersifat fotokatalis aktif. Proses degradasi terbesar kedua terjadi pada proses fotolisis dengan konsentrasi sisa formaldehida sebesar 49 % pada menit ke-40. Pada proses degradasi formaldehida terlihat bahwa titik-titik sampling yang ada penyebarannya tidak merata, hal ini disebabkan oleh difusi uap formaldehida di dalam tabung reaktor tidak merata, sehingga menyebabkan beberapa kondisi pengukuran tidak homogen. Oleh karena itu, untuk mengatasi hal tersebut diperlukan desain reaktor yang lebih baik, sehingga hasil yang didapat lebih representatif.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1. Kesimpulan

Material TiO₂ mesopori yang telah disintesis, mempunyai luas permukaan sebesar 35,56 m²/g, dengan diameter dan volume pori sebesar 7,23 nm dan 0,13 cm³/g, diamati adanya *hysteresis loop* pada kurva isotherm adsorpsi yang merupakan karakteristik bagi material mesopori, mengkonfirmasi keberadaan struktur mesopori dalam TiO₂ yang disintesis.

TiO₂ mesopori hasil sintesis belum memiliki luas permukaan yang cukup besar. Hal ini disebabkan struktur mesopori yang terbentuk merupakan struktur *lamellar* yang tidak stabil.

Nilai celah pita energi yang didapat dari analisis dengan UV *diffuse reflectant spectroscopy* menghasilkan nilai sebesar 3,13 eV, yang sedikit lebih kecil dari standar anatase, dikarenakan adanya sebagian fasa rutil pada kristal.

Hasil karakterisasi dengan XRD untuk TiO₂ mesopori hasil sintesis menunjukkan bentuk kristal anatase dan rutil, sementara hasil karakterisasi dengan SEM menunjukkan partikel berbentuk menyerupai bola (*spherical shape*) dengan rata-rata ukuran partikel 50 – 90 nm.

Uji degradasi fotokatalitik formaldehida terhadap TiO₂ mesopori hasil sintesis, menunjukkan proses degradasi yang lebih cepat dibanding proses fotolisis yang dilakukan tanpa katalis TiO₂.

5.2. Saran

Diperlukan studi lebih lanjut mengenai material yang paling cocok digunakan sebagai *template* dan perlu dilakukan variasi penambahan jumlah *template* untuk mendapatkan material TiO₂ mesopori dengan luas permukaan yang besar.

Diperlukan metode alternatif penghilangan *template* selain melalui proses kalsinasi, seperti ekstraksi dengan pelarut organik, agar struktur mesopori tetap utuh setelah penghilangan *template*.

Proses kalsinasi sebaiknya dilakukan secara perlahan, dimulai dengan dipanaskan pada suhu 350 °C selama 2 jam, untuk menghilangkan sebagian besar *template*, lalu dilanjutkan dengan pemanasan pada suhu 500 °C untuk mentransformasi material menjadi fasa anatase.

Diperlukan desain reaktor yang lebih baik untuk uji degradasi fotokatalitik terhadap polutan organik sehingga didapatkan kondisi pengukuran yang lebih homogen.

Diperlukan uji degradasi fotokatalitik dengan material TiO₂ non pori sebagai pembanding.

Diperlukan uji degradasi fotokatalitik terhadap senyawa polutan organik lainnya yang bersifat toksik dan *persistent* di lingkungan.

DAFTAR REFERENSI

- Abdullah, Mikrajuddin, dan Khairurrijal. *Karakterisasi Nanomaterial: Teori, Penerapan, dan Pengolahan Data*. CV Rezeki Putera Bandung. Bandung: 2010.
- Antonelli, David M., dan Jackie Y. Ying. *Synthesis of Hexagonally Packed Mesoporous TiO₂ by a Modified Sol-Gel Method*. Chem. Int. Ed. Engl. Communications 34 (1995): 2014-2017.
- Bu, S. J., et al. *Synthesis of TiO₂ Porous Thin Films by Polyethylene glycol Templating and Chemistry of the Process*. Journal of the European Ceramic Society 25 (2005): 673-679.
- Brown, Michael E. *Introduction to Thermal Analysis*. New York: Kluwer Academic Publisher. 1990.
- Byrappa, K., T. Adschiri. *Hydrothermal technology for Nanotechnology*. Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials 53 (2007) 117 – 166.
- Byrne, J. A., B. R. Eggins, N. M. D. Brown, B. McKinney, M. Rouse. *Immobilisation of TiO₂ Powder for The Treatment of Polluted Water*. Applied Catalysis B: Environmental 17 (1998): 25-36.
- Corma, Avelino. *From Microporous to Mesoporous Molecular Sieve Materials and Their Use in Catalysis*. Chem. Rev. 97 (1997): 2373-2419.
- Cullity, B. D. *Elements of X-Ray Diffraction*. Massachusetts: Addison – Wesley Publishing Company, Inc. 1956.
- Daniels, T. *Thermal Analysis*. London : Kogan Page. 1973.
- Du, J. et al. *Mesoporous TiO₂ with Wormlike Structure Synthesized via Interfacial Surfactant Assisted Route*. Microporous and Mesoporous Materials 83 (2005): 19 – 24.
- EPA (2011, February 15). *An Introduction to Indoor Air Quality*. April 21, 2011. <http://www.epa.gov/iaq/formalde.html>
- Fujishima, A., K. Hashimoto, dan T. Watanabe. *TiO₂ Photocatalysis Fundamental and Applications*. BKC Inc., Japan, 1999.
- Gusfıyesi. *Studi Degradasi Fotokatalitik Lapisan Tipis TiO₂ Terhadap Asap Roko Dibandingkan dengan Model Degradasi Benzena*. Tesis Magister Ilmu Kimia. Departemen Kimia, FMIPA, UI.
- J. Yu, X. Zhao Q. Hao, dan G. Wang. *Preparation and Characteristic of Super Hydrophilic Porous TiO₂ Coating Film*. Mater. Chem. Phys., 68 (2001) : 253-259.
- Kim, Dong Suk, Seung Yeop Kwak. *The Hydrothermal Synthesis of Mesoporous TiO₂ with High Crystallinity, Thermal Stability, Large Surface Area, and Enhanced Photocatalytic Activity*. Applied Catalysis A 323 (2007): 110-118.
- Laudise, R.A. *Hydrothermal Synthesis of Crystals*. Great Britain: Van Nostrand Reinhold Company. 1996.
- Linsebigler, Amy L., Guangquan Lu, and John T. Yates Jr. *Photocatalysis on TiO₂ Surfaces: Principles, Mechanisms, and Selected Results*. Chem. Rev 95 (1995): 735-758.
- Mineral Data Publishing (2001). *Anatase TiO₂*. Mei 31, 2011. <http://www.handbookofmineralogy.org/pdfs/anatase/pdf>.

- Mineral Data Publishing (2001). Rutile TiO_2 . Mei 31, 2011. <http://www.handbookofmineralogy.org/pdfs/rutile/pdf>.
- Mulja, Muhammad dan Suherman. Analisa Instrumental. Airlangga University Press. Surabaya: 1995.
- Noguchi, Tetsuro, Akira Fujishima, Philip Sawunyama dan Kazuhito Hashimoto. *Photocatalytic Degradation of Gaseous Formaldehyde Using TiO_2 Film*. Environmental Science and Technology 32 (1998): 3831-3833.
- Pavatsupree, Sorapong, Jaturong Jitputti, Supachai Ngamsinlapasathian, Yoshikazu Suzuki, dan Susumu Yoshikawa. *Structural, Photocatalytic Activity and Photovoltaic Properties of Mesoporous Anatase Titania Nanopowders Prepared by Hydrothermal Method*. 2007.
- Peters, Alisia M. *Synthesis and Characterization of Templated Mesoporous Silica Membranes*. Netherlands: University of Twente. 2004.
- Read, J. *Text-Book of Organic Chemistry*, London: G Bell & Sons. 1973.
- Slamet. Reduksi CO_2 Secara Fotokatalitik dengan Katalis Titania dan Tembaga Titania. Tesis Magister Ilmu Kimia. Departemen Kimia, FMIPA UI, 2004.
- Sunardi. Penuntun Praktikum Kimia Analisis Instrumen. Departemen Kimia, FMIPA UI, 2008.
- Thermo Scientific. (2011). *Polyethylene Glycol (PEG)*. 21 Januari, 2011. <http://www.thermo.com/pierce/polyethyleneglycol>
- Torrent, Jose dan Barron, Vidal. *Diffuse Reflectance Spectroscopy*. Soil Science Society of America 677 (2008): 367 – 385.
- Wang, Yan, Zhao Hua Jiang, Feng Jie Yang. *Preparation and Photocatalytic Activity of Mesoporous TiO_2 derived from Hydrolysis Condensation with TX-100 as Template*. Materials Science and Engineering B 128 (2006): 229-233.
- Yusuf, Miah Muhammed, Imai, Hiroaki, and Hirashima, Hiroshi. *Preparation of Mesoporous Titania by Templating with Polymer and Surfactant and its Characterization*. Journal of Sol-Gel Science and Technology 28 (2003): 97-104.
- Zhang, Li, et al. *Preparation and Performances of Mesoporous TiO_2 Film Photocatalyst Supported on Stainless Steel*. Applied Catalyst B: Environmental 40 (2003): 287-292.
- Zhang, Qinghong dan Gao Lian. *Effects of Calcination on The Photocatalytic Properties of Nanosized TiO_2 Powder Prepared by TiCl_4 Hydrolysis*. Journal of Applied Catalysis, 26 (2000): 207-715.

Lampiran 1. Data Proses Degradasi Formaldehida

1. Data perhitungan konsentrasi formaldehida

1.1. Blanko

NO	Waktu (menit)	Area	Konsentrasi (ppm)	Konsentrasi (%)
1	0	47698	1200	100
2	10	43647	1098	92
3	20	102951	2591	216
4	30	60169	1514	126
5	40	61372	1544	129
6	50	44040	1108	92
7	60	45230	1138	95
8	70	79616	2004	167
9	80	37442	942	79
10	90	67413	1696	141
11	100	38310	964	80
12	110	41973	1056	88
13	120	66098	1663	139
14	130	35991	906	75
15	140	46633	1173	98
16	150	34709	873	73

Luas area standar 1 % : 397384

1.2. Fotolisis

NO	Waktu (menit)	Area	Konsentrasi (ppm)	Konsentrasi (%)
1	0	60769	1623	100
2	10	11687	312	19
3	20	8634	231	14
4	30	32682	873	54
5	40	29684	793	49
6	50	23154	618	38
7	60	10437	279	17
8	70	23320	623	38
9	80	17586	470	29
10	90	24734	661	41
11	100	18563	496	31
12	110	22886	611	38
13	120	13044	348	21
14	130	8451	226	14
15	140	25680	686	42
16	150	14405	385	24

Luas area standar 1 % : 374394

1.3. Fotokatalisis

NO	Waktu (menit)	Area	Konsentrasi (ppm)	Konsentrasi (%)
1	0	61708	1675	100
2	10	22852	620	37
3	20	25778	700	42
4	30	22891	621	37
5	40	15964	433	26
6	50	10209	277	17
7	60	10962	298	18
8	70	24753	672	40
9	80	16838	457	27
10	90	17765	482	29
11	100	16262	441	26
12	110	21937	596	36
13	120	20436	555	33
14	130	17859	485	29
15	140	5080	138	8
16	150	11016	299	18

Luas area standar 1 % : 368343

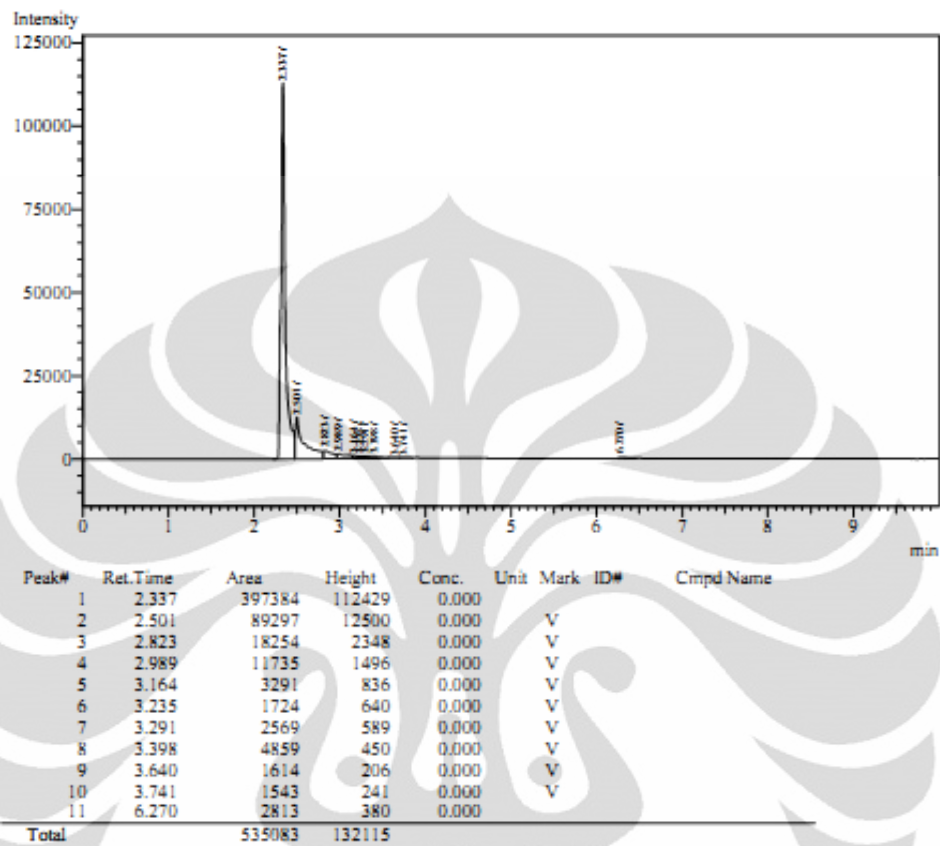
1.4. Katalisis

NO	Waktu (menit)	Area	Konsentrasi (ppm)	Konsentrasi (%)
1	0	157984	3550	100
2	10	39476	887	25
3	20	50709	1140	32
4	30	32704	735	21
5	40	82317	1850	52
6	50	64430	1448	41
7	60	119971	2696	76
8	70	121475	2730	77
9	80	77131	1733	49
10	90	52091	1171	33
11	100	57941	1302	37
12	110	24244	545	15
13	120	94760	2129	60
14	130	36160	813	23
15	140	38464	864	24
16	150	21355	480	14

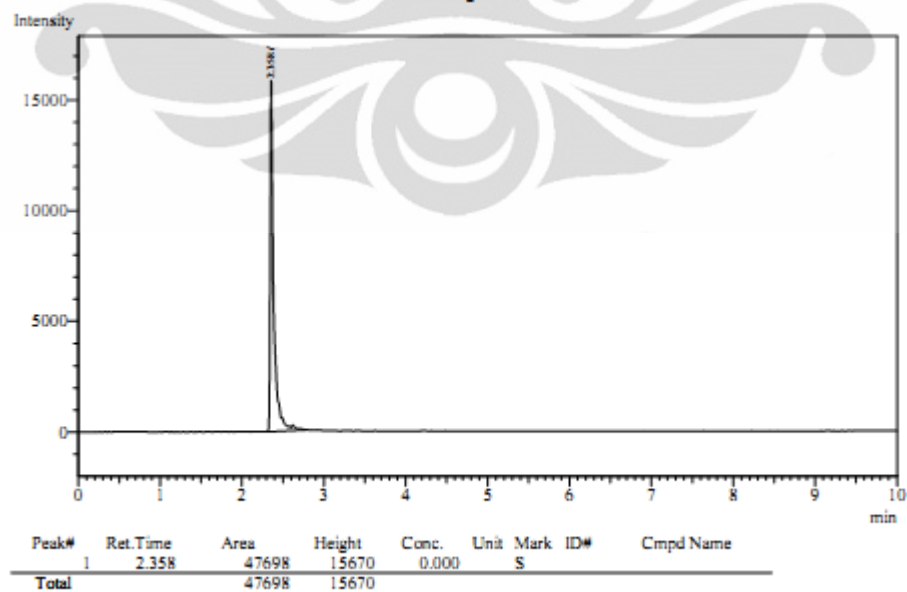
Luas area standar 1 % : 445006

2. Tipikal kromatogram

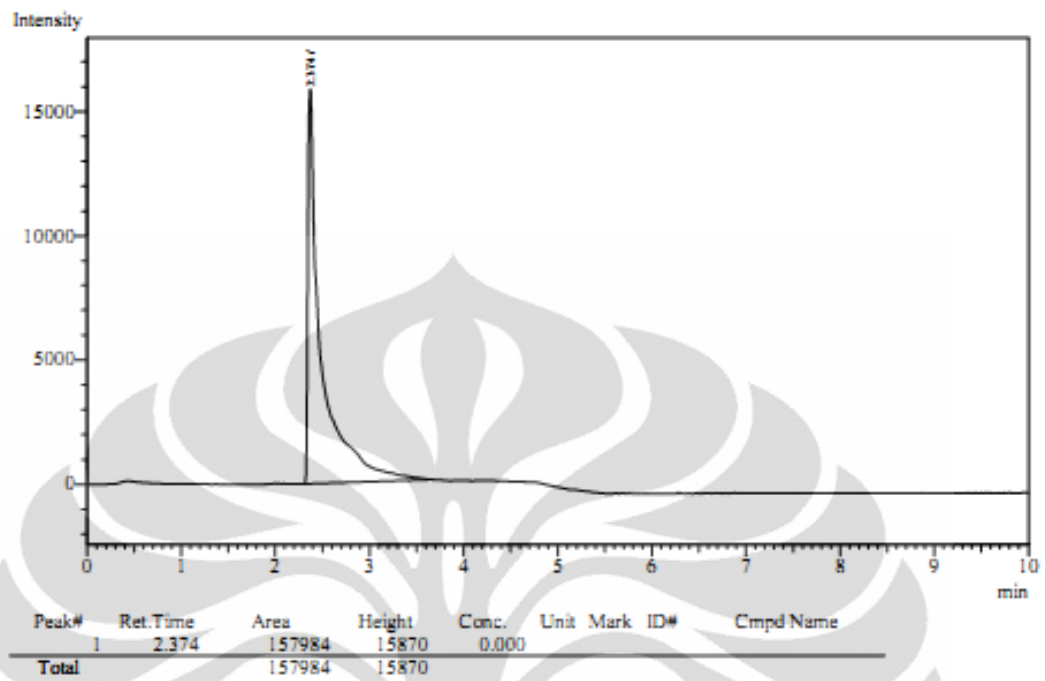
2.1. Standar 1 %



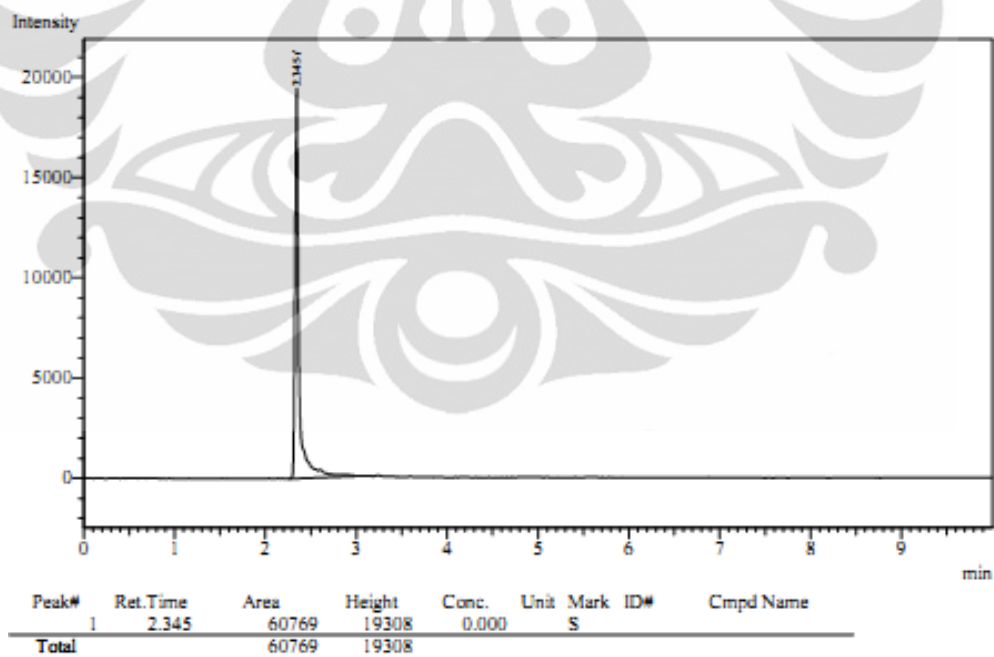
2.2. Blanko



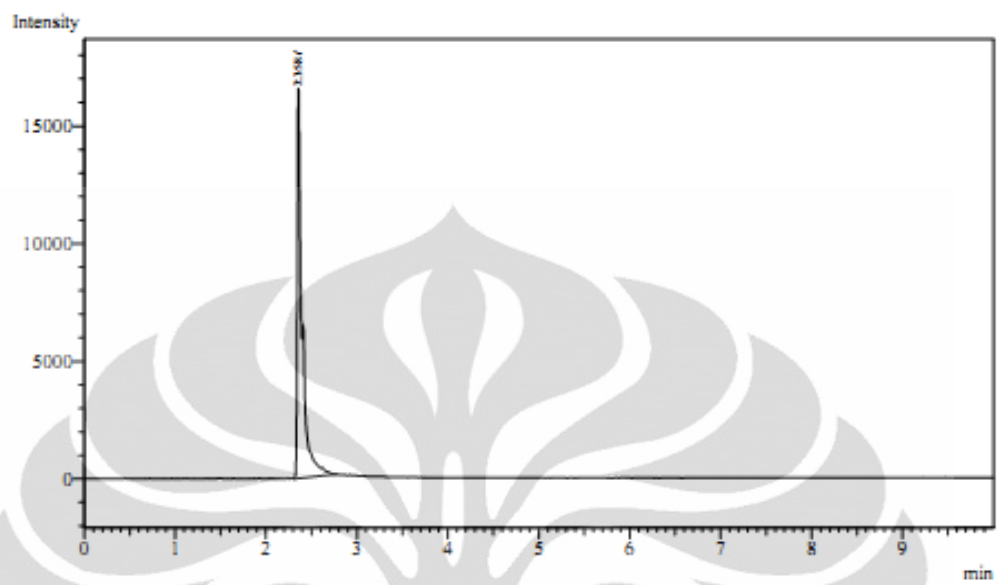
2.3. Katalisis



2.4. Fotolisis



2.5. Fotokatalis



Peak#	Ret. Time	Area	Height	Conc.	Unit	Mark	ID#	Cmpd Name
1	2.358	61708	16325	0.000		S		
Total		61708	16325					

3. Kondisi kromatografi gas

Carrier gas : N₂

3.1. Injektor

Suhu : 160 °C

Tekanan : 88,2 kPa

Total *flow* : 50 ml/min

3.2. Kolom

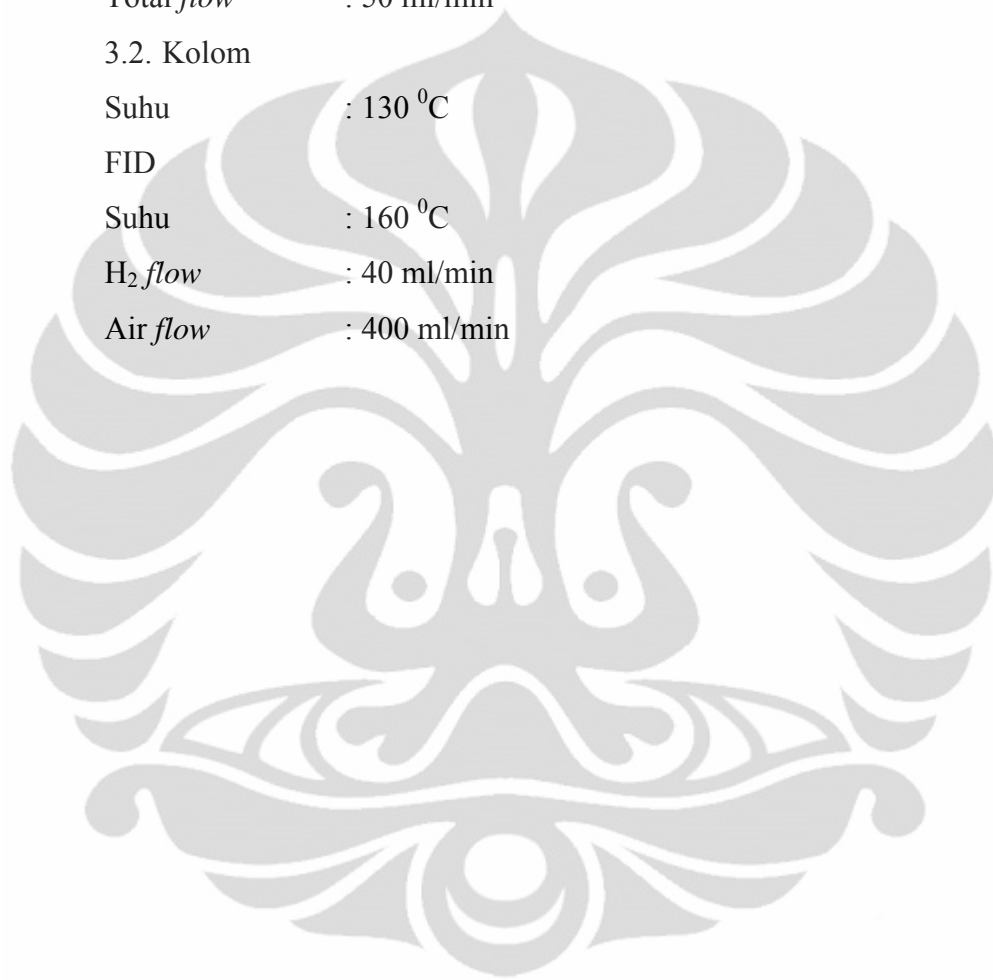
Suhu : 130 °C

FID

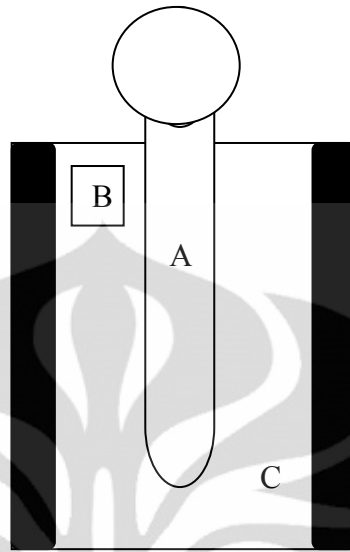
Suhu : 160 °C

H₂ *flow* : 40 ml/min

Air *flow* : 400 ml/min



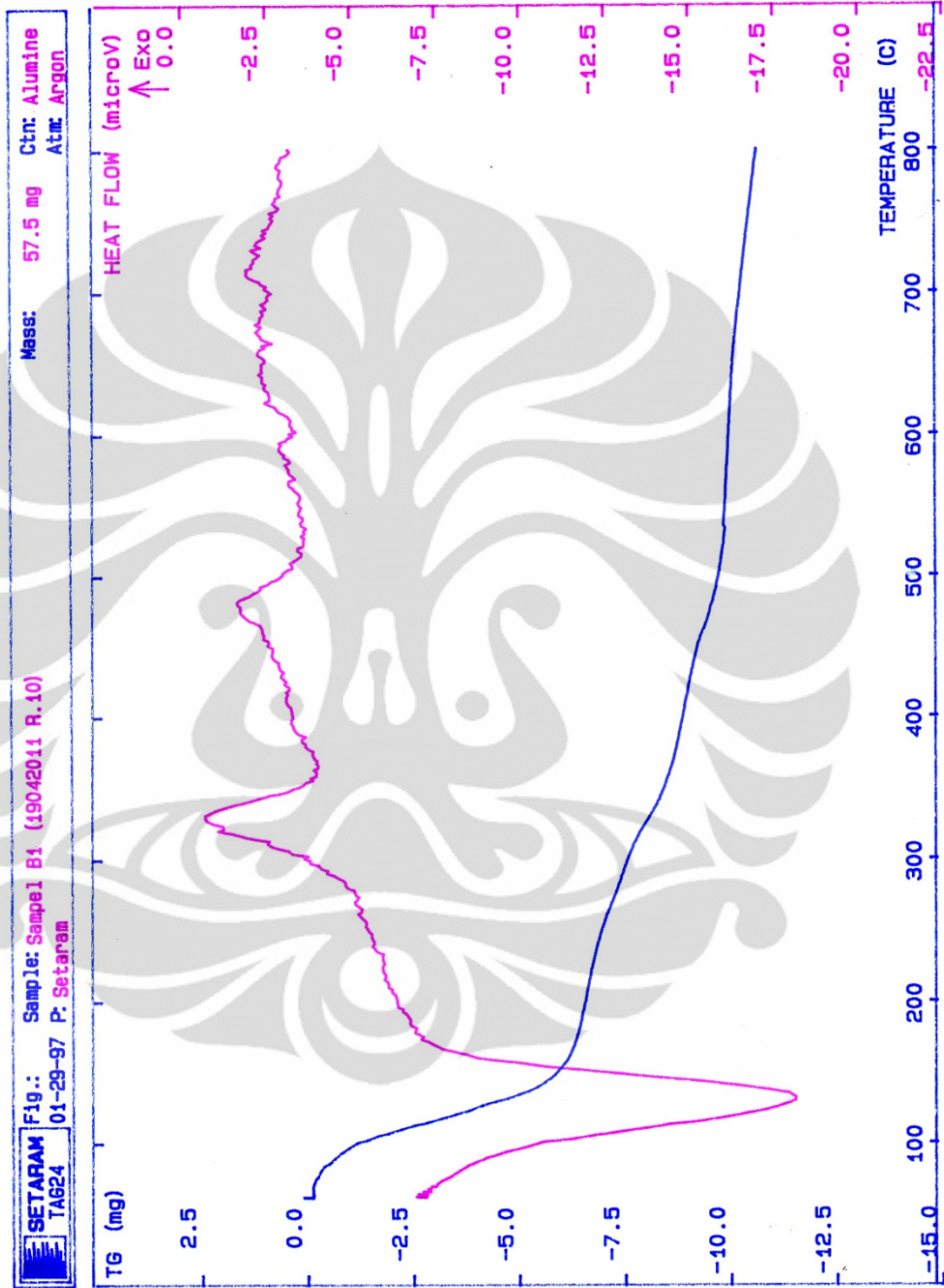
Lampiran 2. Diagram Reaktor Proses Degradasi Formaldehida



Keterangan:

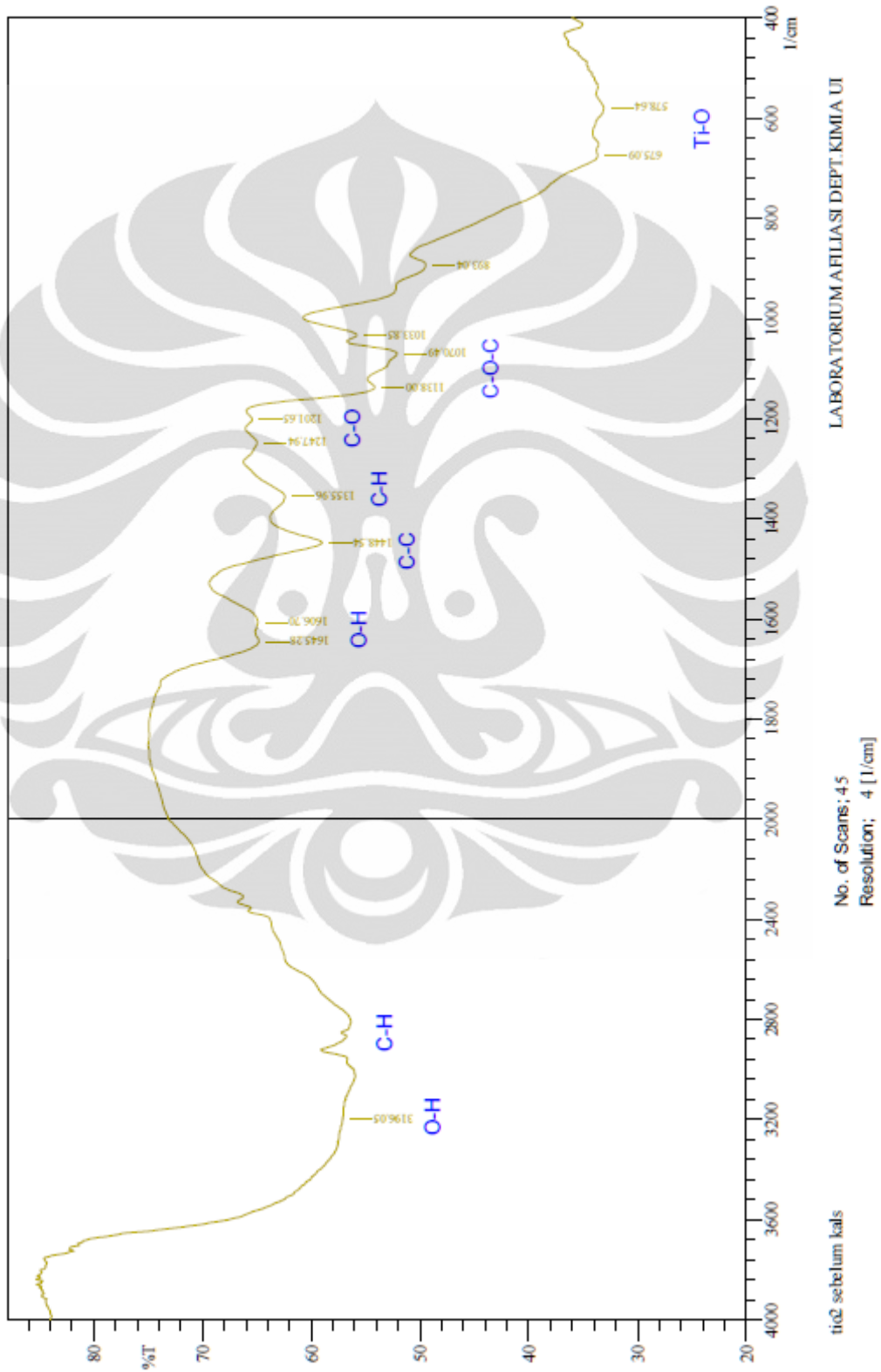
- A : *Batch reactor*
- B : Reaktor fotokatalitik
- C : Lampu UV *blacklight*

Lampiran 3. Spektrum DTA-TGA

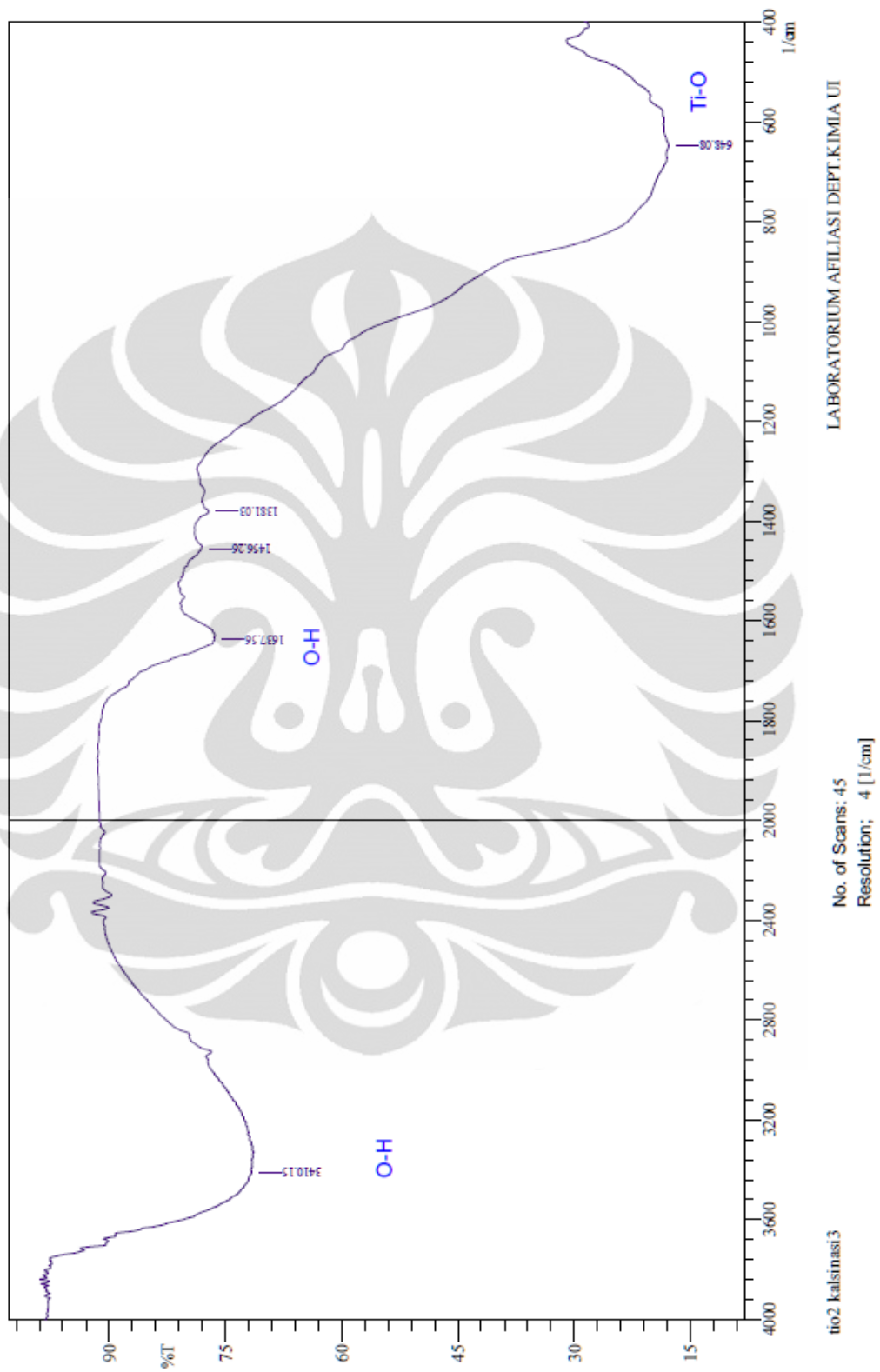


Lampiran 4. Spektrum FTIR

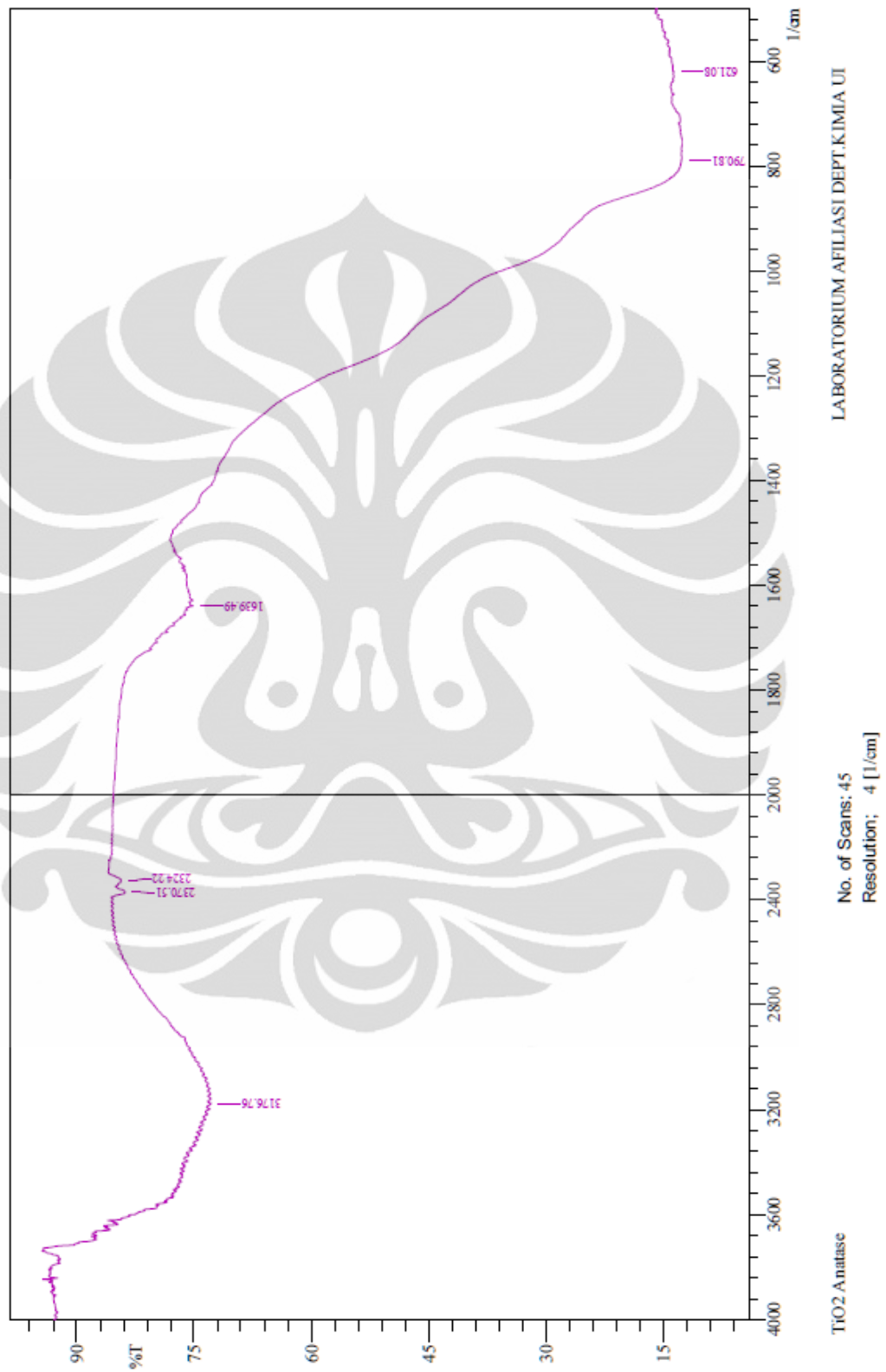
4.1. Sebelum Kalsinasi



4.2. Sesudah Kalsinasi



4.3. Standar Anatase



Lampiran 5. Data BET

F-413.3



Laboratorium Pengujian tekMIRA

PUSAT PENELITIAN DAN PENGEMBANGAN TEKNOLOGI MINERAL DAN BATUBARA

Jl. Jenderal Sudirman 623 Bandung - 40211

Telepon : (022) 6030483 Faksimile : (022) 6003373 e-mail : lab_uji@tekmira.esdm.go.id

Nomor : 598 /LFM/V/2011

10 Mei 2011

SERTIFIKAT ANALISIS CERTIFICATE OF ANALYSIS

Dibuat untuk : Sdr. Hani Tiara S
Certified for Mahasiswa FMIPA-UI

Jenis contoh : Serbuk Zeolit
Type of sample

Asal contoh : Hasil Proses
Origin of sample

Jumlah contoh : 1 (satu)
Amount of sample

Nomor laboratorium : 1957/2011
Laboratory number

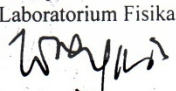
Contoh diterima : 04-05-2011
Sample received on

Hasil analisis :
Analysis results

Nomor Lab.	Kode Contoh	Luas Permukaan (BET) m ² /gr	Total Volume Pori cc/g	Radius Pori Rata-rata Å
1957/2011	Hani Kimia UI Meso	35,556	0,1285	72,27

Keterangan : - Hasil analisis lengkap terlampir

Manajer Teknis
Laboratorium Fisika Mineral,


Ir. Tatang Wahyudi, M.Sc.
NIP 19560208 198403 1 001

Catatan : 1. Hasil pengujian/analisis ini hanya berlaku untuk contoh yang diuji
Notes These analysis result are only valid for the tested samples

2. Sertifikat ini tidak boleh diperbanyak (digandakan) tanpa izin dari Manajer Teknis
These Certificate shall not be reproduced (copied) without written permission of the Technical Manager

Quantachrome QuadraWin - Data Acquisition and Reduction
for QuadraSorb SI
©2000-07, Quantachrome Instruments. All rights reserved.
version 3.12



Analysis		Report	
Operator: Kamelia	Date: 5/9/2011	Operator: Kamelia	Date: 5/9/2011
Sample ID: 1957-11	Filename: C:\QCdata\Physisorb\QW2_110509_01 1957-11 Hani Kimia UI Meso Serbuk 2	Comment: Degassing dilakukan hingga <50 mt	
Sample Desc: Serbuk Zeolit	Sample Volume: 0.1024 cc	Run mode: Standard	Instrument: QuadraSorb Station 2
Sample weight: 0.0895 g	End of run: 5/9/2011 2:19:04	Outgas Temp: 300.0 C	
Analysis Time: 266.6 min	Run mode: Standard	Bath Temp: 77.3 K	
Void Vol.: Cell Cal. ID: 21	Outgas Temp: 300.0 C	Equil time: 30/30 sec (ads/des)	Equil timeout: 300/300 sec (ads/des)
Outgas Time: 5.0 hrs	Bath Temp: 77.3 K		
Analysis gas: Nitrogen	Equil time: 30/30 sec (ads/des)		
Press. Tolerance: 0.050/0.050 (ads/des)			

Area-Volume Summary

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Nitrogen	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section:	16.200 Å ²		

Surface Area Data

MultiPoint BET.....	3.556e+01 m ² /g
Langmuir surface area.....	6.015e+01 m ² /g
BJH method cumulative adsorption surface area.....	3.844e+01 m ² /g
BJH method cumulative desorption surface area.....	5.156e+01 m ² /g
DH method cumulative adsorption surface area.....	3.884e+01 m ² /g
DH method cumulative desorption surface area.....	5.229e+01 m ² /g
t-method external surface area.....	3.556e+01 m ² /g
DR method micropore area.....	4.690e+01 m ² /g

Pore Volume Data

Total pore volume for pores with Radius less than 4834.54 Å at P/Po = 0.998020.....	1.285e-01 cc/g
BJH method cumulative adsorption pore volume.....	1.286e-01 cc/g
BJH method cumulative desorption pore volume.....	1.329e-01 cc/g
DH method cumulative adsorption pore volume.....	1.252e-01 cc/g
DH method cumulative desorption pore volume.....	1.303e-01 cc/g
DR method micropore volume.....	1.667e-02 cc/g
HK method cumulative pore volume.....	1.112e-02 cc/g
SF method cumulative pore volume.....	1.166e-02 cc/g

Pore Size Data

Average pore Radius.....	7.227e+01 Å
BJH method adsorption pore Radius (Mode Dv(r)).....	9.184e+01 Å
BJH method desorption pore Radius (Mode Dv(r)).....	6.204e+01 Å
DH method adsorption pore Radius (Mode Dv(r)).....	9.184e+01 Å
DH method desorption pore Radius (Mode Dv(r)).....	6.204e+01 Å
DR method micropore Half pore width.....	2.537e+01 Å
DA method pore Radius (Mode).....	1.160e+01 Å
HK method pore Radius (Mode).....	1.838e+00 Å
SF method pore Radius (Mode).....	2.261e+00 Å

Quantachrome QuadraWin - Data Acquisition and Reduction
for QuadraSorb SI
©2000-07, Quantachrome Instruments. All rights reserved.
version 3.12

**Analysis**

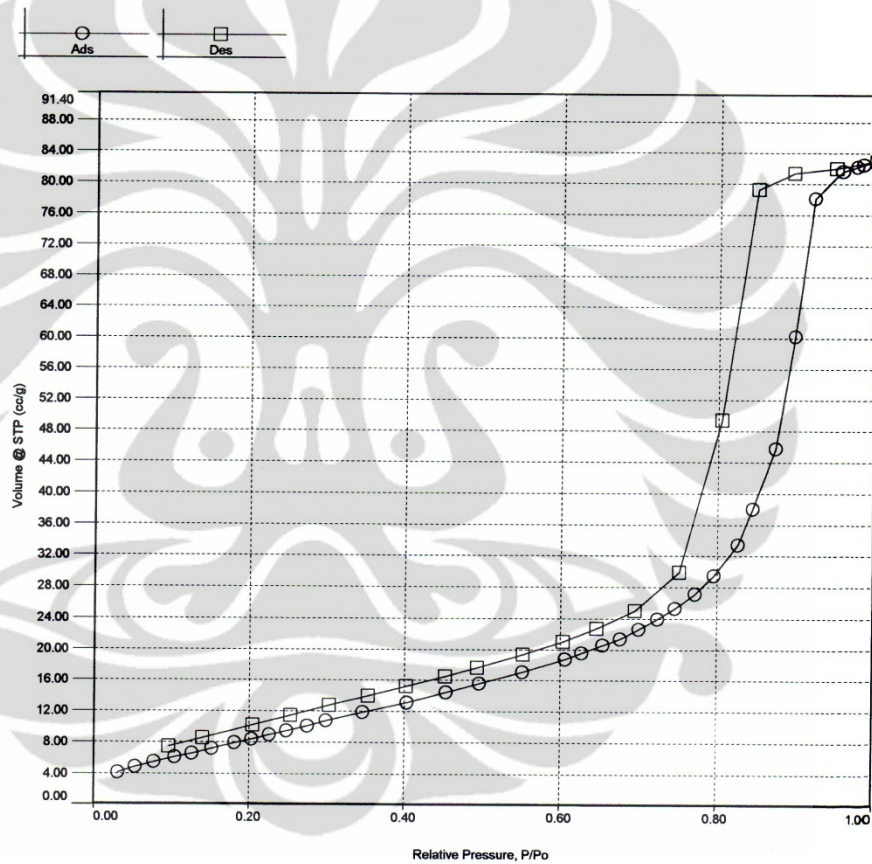
Operator: Kamelia
Sample ID: 1957-11
Sample Desc: Serbuk Zeolit
Sample weight: 0.0895 g
Analysis Time: 266.6 min
Void Vol.: Cell Cal. ID: 21
Outgas Time: 5.0 hrs
Analysis gas: Nitrogen
Press. Tolerance: 0.050/0.050 (ads/des)

Date: 5/9/2011

Filename:
Comment:
Sample Volume: 0.1024 cc
End of run: 5/9/2011 2:19:04
Run mode: Standard
Outgas Temp: 300.0 C
Bath Temp: 77.3 K
Equil time: 30/30 sec (ads/des)

Report

Operator: Kamelia
Date: 5/9/2011
C:\QCdata\Physisorb\QW2_110509_01 1957-11 Hani Kimia UI Meso Serbuk.
Degassing dilakukan hingga <50 mt
Instrument: QuadraSorb Station 2
Equil timeout: 300/300 sec (ads/des)

Isotherm * Linear

Quantachrome QuadraWin - Data Acquisition and Reduction for QuadraSorb SI ©2000-07, Quantachrome Instruments. All rights reserved. version 3.12 Report id: {487722438;20110509 131803812} Page 1 of 1

Quantachrome QuadraWin - Data Acquisition and Reduction
for QuadraSorb SI
©2000-07, Quantachrome Instruments. All rights reserved.
version 3.12

Quantachrome
INSTRUMENTS

Optimizing particle performance

Analysis

Operator: Kamelia
Sample ID: 1957-11
Sample Desc: Serbuk Zeolit
Sample weight: 0.0895 g
Analysis Time: 266.6 min
Void Vol.: Cell Cal. ID: 21
Outgas Time: 5.0 hrs
Analysis gas: Nitrogen
Press. Tolerance: 0.050/0.050 (ads/des)

Date: 5/9/2011

Filename: C:\QCdata\Physisorb\QW2_110509_01
Comment: Degassing dilakukan hingga <50 mt
Sample Volume: 0.1024 cc
End of run: 5/9/2011 2:19:04
Run mode: Standard
Outgas Temp: 300.0 C
Bath Temp: 77.3 K
Equil time: 30/30 sec (ads/des)

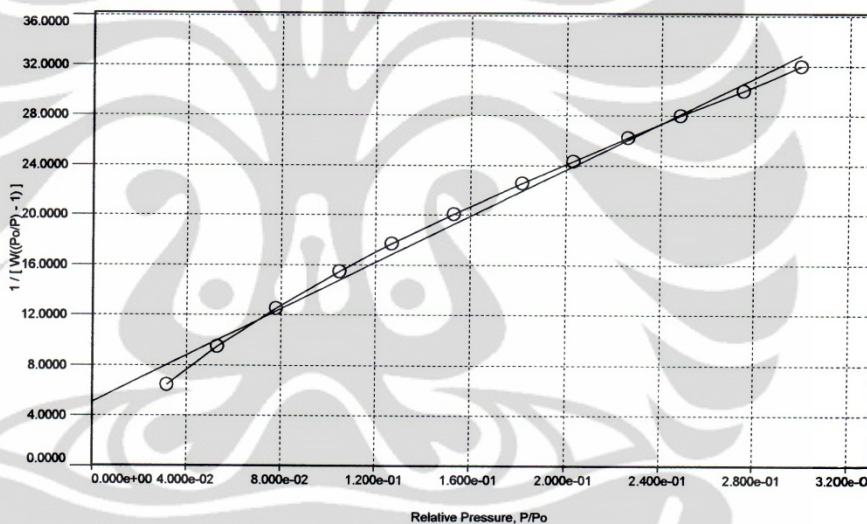
Report

Operator: Kamelia
Date: 5/9/2011
C:\QCdata\Physisorb\QW2_110509_01 1957-11 Hani Kimia UI Meso Serbuk :
Instrument: QuadraSorb Station 2
Equil timeout: 300/300 sec (ads/des)

Multi-Point BET Plot

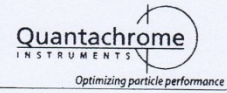
Adsorbate		Data Reduction Parameters		Liquid Density:
Nitrogen	Molec. Wt.: 28.013 g	Temperature	77.350k	0.808 g/cc
		Cross Section:	16.200 Å ²	

A D BF



BET summary	
Slope =	92.910
Intercept =	5.034e+00
Correlation coefficient, r =	0.995641
C constant =	19.457
Surface Area =	35.556 m ² /g

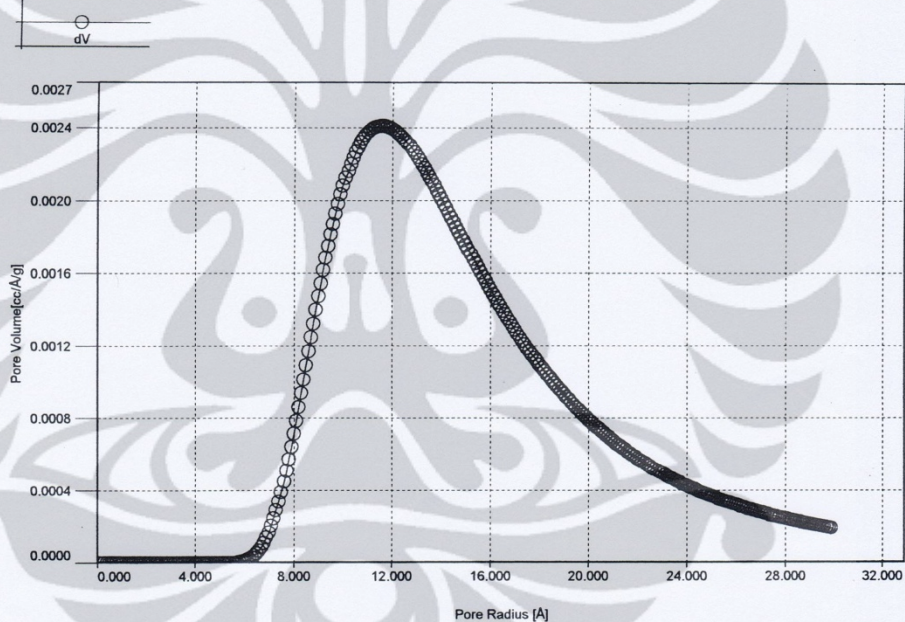
Quantachrome QuadraWin - Data Acquisition and Reduction
for QuadraSorb SI
©2000-07, Quantachrome Instruments. All rights reserved.
version 3.12



Analysis	Date: 5/9/2011	Report	Date: 5/18/2011
Operator: Kamelia	Filename:	Operator: Kamelia	Sample Desc: Serbuk Zeolit
Sample ID: 1957-11	Comment:	Sample Volume: 0.1024 cc	Analysis Time: 266.6 min
Sample weight: 0.0895 g	End of run: 5/9/2011 2:19:04	Instrument: QuadraSorb Station 2	Void Vol.: Cell Cal. ID: 21
Analysis Time: 266.6 min	Run mode: Standard	OutgasTemp: 300.0 C	Outgas Time: 5.0 hrs
Cell Cal. ID: 21	Bath Temp: 77.3 K	Equil time: 30/30 sec (ads/des)	Analysis gas: Nitrogen
Outgas Time: 5.0 hrs	Equil time: 30/30 sec (ads/des)	Equil timeout: 300/300 sec (ads/des)	Press. Tolerance: 0.050/0.050 (ads/des)

DA Plot

DA Method	Incr. E: 500.000	Data Reduction Parameters	Incr. n: 0.100	Interact. Const. (K): 2.960
Adsorbate	Nitrogen	Temperature: 77.350K	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Molec. Wt.: 28.013 g			



DA method summary	
Best E =	1.435 kJ/mol
Best n =	1.000
DA Micropore Volume =	0.026 cc/g
Pore Radius (mode) =	1.160e+01 Å