

SINTESIS DAN KARAKTERISASI KOMPOSIT TiO_2 -GRAPHENE/SURFAKTAN UNTUK ELIMINASI FENOL

D. Heltina^{1*}, A. Partama¹, D. I. Mastura¹, D. G. Randa¹, M. B. A. Naufal¹

¹ Teknik Kimia, Universitas Riau, Pekanbaru

Corresponding author: desi.heltina@lecturer.unri.ac.id

ABSTRAK: Pengaruh temperatur terhadap eliminasi fenol menggunakan komposit TiO_2 -*graphene*/surfaktan telah diselidiki. Fenol merupakan senyawa kimia yang bersifat toksik sehingga perlu dieliminasi. Eliminasi fenol dapat dilakukan dengan proses fotokatalisis sehingga dapat mengubah fenol menjadi senyawa yang ramah lingkungan yaitu CO_2 dan H_2O . Kinerja fotokatalis titania (TiO_2) ditingkatkan dengan menggunakan *graphene* sebagai dopan pada titania. Untuk mengurangi aglomerasi *graphene*, permukaan *graphene* dimodifikasi dengan surfaktan. Tujuan penelitian ini adalah membuat komposit titania-*graphene*/surfaktan dan mengetahui pengaruh temperatur terhadap efektivitas fotodegradasi dalam mengeliminasi fenol menggunakan komposit titania-*graphene*/surfaktan. Sintesis komposit titania-*graphene* /surfaktan dilakukan dengan proses pencampuran dan penguapan. Hasil komposit dikarakterisasi menggunakan SEM, FTIR, dan XRD. Fotodegradasi fenol dilakukan pada suhu degradasi (30°C , 40°C , dan 50°C) dan konsentrasi 10 ppm selama 4 jam di bawah sinar UV. Sampel diambil dalam rentang waktu tertentu dan dianalisa menggunakan Spektrofotometer UV-Vis. Efektivitas degradasi dalam mengeliminasi fenol yang paling tinggi diperoleh pada suhu 50°C yaitu sebesar 92,85 %.

Kata Kunci : fenol, fotokatalisis, *graphene*, komposit, titania.

ABSTRACT: The effect of temperature on phenol elimination using a TiO_2 -*graphene* / surfactant composite was investigated. Phenol is a chemical compound that is toxic so it needs to be eliminated. The phenol can be removed through the photocatalytic process so that the phenol can be converted into environmentally friendly compounds, namely, CO_2 and H_2O . The performance of titania (TiO_2) photocatalyst has been improved by using *graphene* as dopan for titania. To reduce *graphene* agglomeration, the *graphene* surface was modified with surfactants. The purpose of this study was to synthesize titania-*graphene* / surfactant composites and to determine the effect of temperature on the effectiveness of photodegradation in eliminating phenols using titania-*graphene* / surfactant composites. The titania-*graphene* / surfactant composites were synthesized by mixing and evaporation processes. The composite results were characterized using SEM, FTIR, and XRD. Photodegradation of phenol was performed at a degradation temperature (30°C , 40°C , and 50°C) and a concentration of 10 ppm for 4 h under UV light. Samples were taken within a certain time frame and analyzed using a UV-Vis Spectrophotometer. The highest effectiveness of degradation in eliminating phenol was obtained at a temperature of 50°C , which was 92.85%.

Keywords: phenol, photocatalysis, *graphene*, composite, titania.

PENDAHULUAN

Fenol merupakan senyawa berbahaya yang banyak terdapat dalam air limbah industri (Al-Hamdi, dkk., 2020). Senyawa fenolik digunakan pada berbagai proses industri seperti *pulp* dan kertas, industri petrokimia, sintesis obat-obatan, penyulingan minyak, produksi polimer dan resin, produksi tekstil serta pemrosesan makanan (Nanikham, dkk., 2019; Naguib, dkk., 2019).

Walaupun memiliki konsentrasi rendah, polutan organik ini dapat mengakibatkan risiko kesehatan yang tinggi seperti potensi gangguan endokrin dan genotoksisitas (Nguyen, dkk., 2015). Oleh karena itu, telah menjadi tantangan tersendiri dalam memperoleh teknologi yang efektif untuk menghilangkan polutan organik dari air limbah serta meminimalkan resiko pencemaran.

Dalam beberapa tahun terakhir, banyak penelitian terfokus pada fotokatalisis untuk degradasi polutan

(Mohamed, dkk., 2019). Fotokatalisis dipilih karena proses yang ramah lingkungan, biaya yang rendah, dan memiliki efisien tinggi (Mei, dkk., 2019). TiO_2 merupakan fotokatalis yang paling menjanjikan untuk menangani limbah karena memiliki fotoaktivitas yang baik di bawah iradiasi sinar ultraviolet, tidak beracun, tidak larut dalam air dan cukup murah (Neves, dkk., 2009). Namun kelemahan utama dari fotokatalis TiO_2 adalah energi pita yang lebar (3,2 eV), sehingga pemanfaatan sinar matahari hanya sekitar 5% dan laju rekombinasinya cepat (Nanikhah, dkk., 2019).

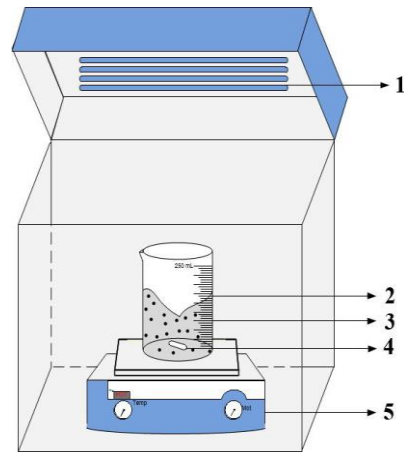
Graphene memiliki sifat luas permukaan yang tinggi, konduktivitas listrik tinggi, mobilitas elektron sangat tinggi, dan konduktivitas termal yang sangat baik (Vaghri, dkk., 2018). Penggunaan *graphene* untuk kombinasi dengan bahan semikonduktor, seperti TiO_2 menghasilkan potensi besar pada proses fotokatalitik. Kombinasi berbasis *graphene* dengan TiO_2 dapat mempersempit energi celah pita dan menurunkan laju rekombinasi pasangan e^-h^+ , serta menghasilkan rentang penyerapan cahaya yang luas (dari UV hingga cahaya tampak) (Nanikhah, dkk., 2019). Modifikasi dilakukan dengan menggunakan surfaktan kationik CTAB untuk membantu dispersi TiO_2 pada permukaan *graphene* dan meningkatkan gaya ikat antara TiO_2 dan *graphene* (Liu, dkk., 2018).

Salah satu parameter yang berpengaruh dalam proses fotokatalis adalah suhu. Peningkatan suhu terhadap aktivitas fotokatalis mengakibatkan interaksi yang terjadi antara molekul fenol dengan permukaan fotokatalis meningkat (Kumar, dkk., 2017). Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengevaluasi pengaruh suhu degradasi terhadap kinerja komposit TiO_2 -*Graphene* (CTAB) dalam mendegradasi fenol melalui proses fotokatalisis.

METODE PENELITIAN

Bahan dan Alat

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah titanium dioksida (TiO_2) P25 Degussa, *graphene*, CTAB, akuades, HNO_3 0,1M, dan fenol. Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas kimia, *hotplate magnetic stirrer*, *magnetic bar*, gelas ukur, pipet ukur, pipet tetes, botol sampel, oven, indikator universal, pompa vakum, *sinterglass*, spatula, *centrifuge*, termometer, saringan kawat 300 mesh, sonikator, reaksi kalsinasi serta serangkaian alat fotoreaktor (Gambar 1).



Gambar 1. Rangkaian alat fotodegradasi (1) Lampu UV (2) Gelas Kimia (3) Sampel uji (4) *Magnetic bar* (5) *Hot Plate Stirrer*.

Prosedur Penelitian

Penelitian ini dimulai dengan modifikasi *graphene* dengan surfaktan CTAB. *Graphene* 1 gram dan surfaktan CTAB 0,5 gram dilarutkan dalam akuades 100 ml. Campuran disonikasi selama 1 jam kemudian disaring menggunakan pompa vakum. Padatan yang diperoleh dikeringkan di oven pada suhu $100\text{ }^\circ\text{C}$ - $110\text{ }^\circ\text{C}$.

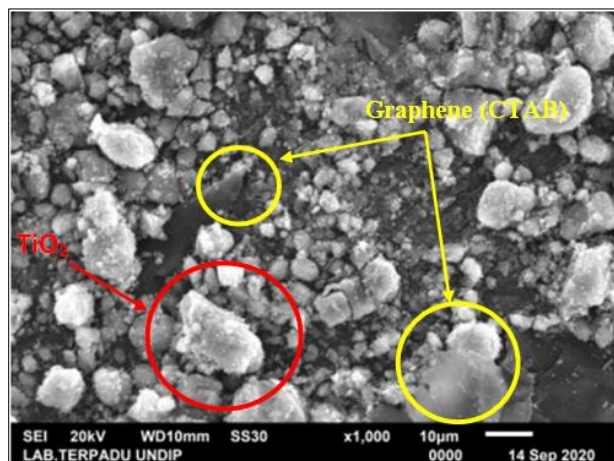
Proses sintesis komposit TiO_2 -*Graphene* (CTAB) dimulai dengan mencampurkan 0,1 gram *graphene* (CTAB) dengan akuades 100 ml dan dilakukan sonikasi selama 30 menit. Selanjutnya TiO_2 1 gram ditambahkan ke dalam campuran dan dilakukan sonikasi kembali selama 30 menit. pH campuran diatur hingga pH = 3 dengan penambahan HNO_3 0,1 M. Campuran diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 300 rpm selama 3 jam. Setelah itu campuran dikeringkan di oven dan padatan yang diperoleh dikalsinasi pada suhu $400\text{ }^\circ\text{C}$ selama 2 jam.

Kinerja komposit TiO_2 - *Graphene* (CTAB) dilakukan menggunakan serangkaian alat fotodegradasi seperti pada Gambar 1. Komposit 0,3 gram dilarutkan dalam larutan fenol 10 ppm sebanyak 300 ml. Campuran diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 300 rpm dengan variasi suhu degradasi $30\text{ }^\circ\text{C}$, $40\text{ }^\circ\text{C}$ dan $50\text{ }^\circ\text{C}$. Uji kinerja komposit dilakukan selama 4 jam dan sampel di ambil setiap 30 menit dengan kondisi *light on*. Selanjutnya sampel yang diperoleh diuji menggunakan alat Spektrofotometri UV-Vis untuk melihat penurunan konsentrasi fenol .

HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Karakterisasi Komposit TiO₂-Graphene (CTAB)

Pada penelitian ini diperoleh morfologi komposit TiO₂-graphene (CTAB) berdasarkan dari hasil karakterisasi SEM. Morfologi komposit TiO₂-graphene (CTAB) dapat dilihat pada Gambar 2.

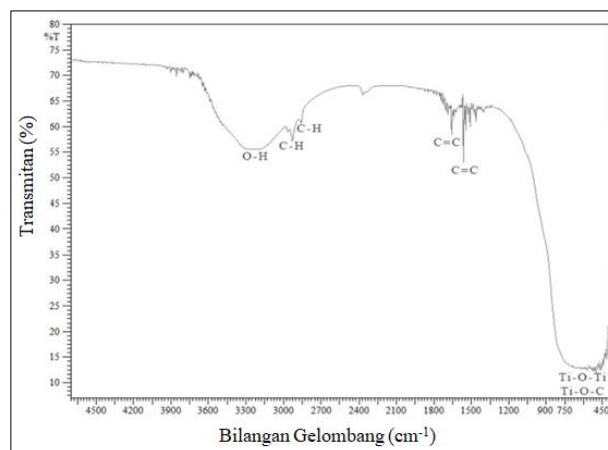


Gambar 2. Morfologi Komposit TiO₂-Graphene (CTAB).

Hasil analisa SEM pada gambar 2 tersebut menunjukkan bahwa partikel TiO₂ yang berbentuk gumpalan telah terdistribusi secara merata diantara partikel graphene (CTAB) yang berbentuk lembaran. Penyebaran partikel TiO₂ tersebut menunjukkan bahwa telah terbentuk ikatan antara titania dengan graphene (CTAB). Pada morfologi komposit tersebut terlihat bahwa partikel titania yang berbentuk agregat lebih mendominasi, hal ini disebabkan jumlah massa massa titania yang digunakan lebih besar dibandingkan massa graphene (CTAB).

Spektra FT-IR komposit TiO₂-Graphene (CTAB) pada panjang gelombang 450-4500 cm⁻¹ dapat dilihat dari gambar 3. Dari spektra FT-IR tersebut dilakukan identifikasi terhadap gugus fungsi yang terdapat pada nanokomposit. Pada bilangan gelombang 3245,37 cm⁻¹ terdapat serapan yang cukup lebar dan diketahui bahwa adanya gugus O-H stretching dari alkohol, sedangkan serapan pada bilangan gelombang 2961,82 cm⁻¹, 2925,17 cm⁻¹, dan 2856,70 berasal dari C-H sp³. Serapan C=C cincin aromatik muncul pada bilangan gelombang 1653,07 cm⁻¹ dan 1558,55 cm⁻¹ (Ardinal, dkk., 2017). Nanokomposit menunjukkan luas puncak di bawah 1000 cm⁻¹ disebabkan oleh pembentukan ikatan Ti-O-Ti dan ikatan Ti-O-C (Alamelu, dkk., 2020). Puncak yang berpusat pada 600–700 cm⁻¹ menandakan vibrasi Ti-O (Rasuli, dkk., 2020). Sampel yang mengandung TiO₂ menunjukkan puncak pada bilangan gelombang

650 cm⁻¹ karena adanya ikatan Ti-O-Ti. Pelebaran puncak Ti-O-Ti disebabkan adanya puncak karena ikatan Ti-O-C (Daraee, dkk., 2020). Adanya ikatan Ti-O-C menunjukkan bahwa ikatan kimia dibangun dengan kuat antara struktur nano graphene dan TiO₂.



Gambar 3. Hasil FTIR Komposit TiO₂-Graphene (CTAB).

Aktivitas proses fotokatalis dari komposit Titania-graphene (CTAB) dipengaruhi oleh fase kristalin dari titania. Penentuan fase kristalin dari komposit TiO₂-graphene (CTAB) dilakukan dengan menggunakan karakterisasi X-Ray Diffraction (XRD). Hasil karakterisasi XRD komposit TiO₂-graphene (CTAB) pada penelitian ini menunjukkan adanya fase kristal campuran antara fase anatase dan fase rutil dengan perbandingan fraksi yaitu 0,83 : 0,17. Efek transfer muatan yang baik dari campuran fase anatase dan fase rutil akan meningkatkan aktivitas komposit dalam proses fotodegradasi (Bouanimba, dkk., 2018).

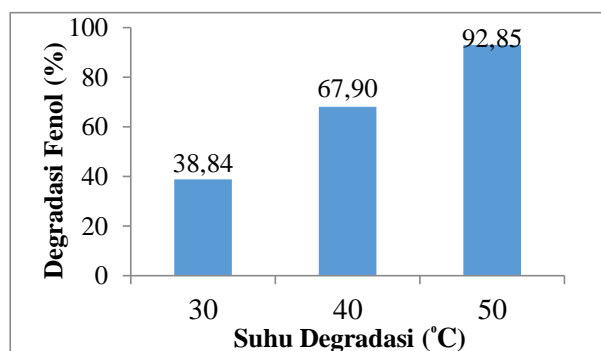
Ukuran kristal dari komposit TiO₂-graphene (CTAB) dihitung dengan menggunakan persamaan Debye-Scherrer berikut:

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta}$$

dimana K adalah Konstanta Scherrer, λ adalah panjang gelombang cahaya yang digunakan untuk difraksi, β merupakan full width half maximum (FWHM), dan θ merupakan sudut Bragg (kurapati dan srivastava, 2018). Berdasarkan hasil perhitungan, ukuran kristal anatase dan rutil masing-masing sebesar 19,46 nm dan 18,83 nm. Ukuran kristal tersebut masih termasuk ukuran kristal TiO₂ yang optimum untuk proses fotodegradasi. Rentang ukuran kristal yang optimum untuk TiO₂ dalam proses fotodegradasi telah mencakup jangkauan yang cukup lebar berkisar antara 3,8-40 nm (Lin dkk, 2006).

B. Pengaruh Suhu Fotokatalisis terhadap Kinerja Komposit dalam Mendegradasi Fenol

Komposit TiO_2 *graphene* (CTAB) yang telah diperoleh kemudian di uji kinerjanya dalam mendegradasi senyawa fenol. Variabel yang digunakan pada pengujian ini adalah perbedaan suhu degradasi pada konsentrasi fenol yang tetap yaitu 10 ppm. Variasi suhu yang digunakan adalah suhu degradasi 30 °C, 40 °C, dan 50 °C. Pengujian kinerja dari komposit ini dilakukan dengan menggunakan analisa spektrofotometer UV-Vis. Efektifitas degradasi fenol dengan konsentrasi 10 ppm pada setiap suhu degradasi dapat dilihat pada gambar 4.



Gambar 4. Degradasi Fenol Pada Variasi Suhu Fotokatalisis.

Profil variasi suhu degradasi (30 °C, 40 °C, dan 50 °C) pada konsentrasi awal fenol 10 ppm tersebut, menunjukkan semakin tinggi suhu degradasi maka semakin tinggi pula persen degradasi yang dihasilkan. Hasil penelitian ini sesuai dengan hasil penelitian Shahrezaei, dkk., (2012), yang menunjukkan bahwa suhu yang lebih tinggi akan meningkatkan laju reaksi yang terjadi antara senyawa organik dan radikal hidroksil ($\bullet\text{OH}$). Dimana, transfer elektron TiO_2 didalam ikatan juga akan meningkat ke energi yang lebih tinggi sehingga akan membantu proses pembentukan elektron *hole* sebagai tempat terjadinya reaksi oksidasi dan reduksi dalam mendegradasi senyawa organik. Hasil ini juga didukung oleh penelitian Barakat, dkk., (2013) yang menyatakan peningkatan suhu menyebabkan meningkatnya frekuensi tumbukan molekul yang lebih besar dan memberikan pengaruh terhadap laju reaksi yang akan meningkatkan efisiensi fotodegradasi.

KESIMPULAN

Komposit TiO_2 -*graphene*/surfaktan telah berhasil disintesis dengan memodifikasi *graphene* menggunakan surfaktan CTAB. Sintesis menghasilkan ukuran kristal anatase dan rutil masing-masing sebesar 19,46 nm dan 18,83 nm dengan perbandingan fraksi anatase dan rutil yaitu 0,83 : 0,17. Efektifitas komposit TiO_2 -*graphene*

(CTAB) dalam mengeliminasi senyawa fenol yang paling tinggi diperoleh pada suhu degradasi optimum 50 °C yaitu 92,85%.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada DRPM Universitas Riau dan Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi (Ditjen Dikti) Kementerian Pendidikan Nasional Republik Indonesia atas dukungan dana penelitian (Hibah) Penelitian Dasar 395 / UN.19.5.1.3 / PT.01.03 / 2020.

DAFTAR PUSTAKA

- Alamelu, K., and Jaffar Ali, B. M. (2020). Au nanoparticles decorated sulfonated graphene- TiO_2 nanocomposite for sunlight driven photocatalytic degradation of recalcitrant compound. *Solar Energy*. 211: 1194–1205.
- Arinal., and M. Rifat. (2017). Synthesis of Ethoxy Lignosulfonic Acid as a Surfactant from Waste of Palm Oil Empty Fruit Bunch. *Jurnal Litbang Industr.*, 7(2): 88-89.
- Al-Hamdi, A., and Sillanpaa, M. (2020). Photocatalytic activities of antimony, iodide, and rare earth metals on SnO_2 for the photodegradation of phenol under UV, solar, and visible light irradiations. *Advance water processes*: 129-288.
- Barakat, N. A. M., Kanjwal, M. A., Chronakis, I. S., & Kim, H. Y. (2013). Influence of temperature on the photodegradation process using Ag-doped TiO_2 nanostructures: Negative impact with the nanofibers. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*. 366 : 333–340.
- Bouanimba, N., Laid, N., Zouaghi, R., & Sehili, T. (2018). A Comparative Study of the Activity of TiO_2 Degussa P25 and Millennium PCs in the Photocatalytic Degradation of Bromothymol Blue. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*. 16(4): 1–19.
- Daraee, M., Ghasemy, E., and rashidi, A. (2020). Effective Adsorption of Hydrogen Sulfide by Intercalation of TiO_2 and N-doped TiO_2 in Graphene Oxide. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 103836: 1-10.
- Kumar, A., and Pandey, G. (2017). A review on the factors affecting the photocatalytic degradation of hazardous materials. *Materials Science & Engineering International Journal*. 1: 106-114.
- Kurapati, S., Srivastava, P. K. (2018). Application of Debye-Scherrer Formula in The Determination of Silver Nano Particles Shapes. *Management*,

- Technology, and Engineering International Journal. 8(12): 1-11
- Liu, L., Li, Y., Tao, E., Jiang, Z., Yang, S., Xu, J., and Qian, J. (2018). Surfactant-assisted titanium dioxide/graphene composite for enhanced conductivity. *Materials Chemistry and Physics*. 217: 365–370.
- Mei, P., Wang, H., Guo, H., Zhang, N., Jia, S., Ma, Y., Xua, J., Lia, Y., Alsulamib, H., Alhodalyb, M. H., Hayath, T., and Sun, Y. (2019). The enhanced photodegradation of bisphenol A by TiO₂/C₃N₄ composites. *Environmental research*. 182: 1-7.
- Mohamed, A., Nasser, W. S., Kamel, B. M., and Hashem, T. (2019). Photodegradation of phenol using composite nanofibers under visible light irradiation. *European Polymer Journal*. 113: 192–196.
- Naguib, D. M and Badawy N. M. (2019). Phenol removal from wastewater using waste products. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 8(1): 1-7.
- Nanikham, U., Magnacca, G., Qiao, A., Kristensen, P. K., Boffa, V., and Yue Y. (2019). Phenol Abatement by Titanium Dioxide Photocatalysts: Effect of The Graphene Oxide Loading. *Nanomaterials*. 9(7): 2-11.
- Neves, M. C., Nogueira, J. M. F., Trindade, T., Mendonça, M. H., Pereira, M. I., and Monteiro, O. C. (2009). Photosensitization of TiO₂ by Ag₂S and its catalytic activity on phenol photodegradation. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*. 204(2-3): 168–173.
- Nguyen, A. T., Hsi, C. T., Juang, R. S. (2016). Substituent effects on photodegradation of phenols in binary mixtures by hybrid H₂O₂ and TiO₂ suspensions under UV irradiation. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*. 000: 1–8.
- Rasuli, H., Rasuli, R., Alizadeh, M., and BoonTong, G. (2020). Microwave-assisted exfoliation and tearing of graphene oxide in the presence of TiO₂ nanoparticles. *Results in Physics* 18. 103200: 1-8.
- Shahrezaei, F., Mansouri, Y., Zinatizadeh, A. A. L., & Akhbari, A. (2012). Photocatalytic Degradation of Aniline Using TiO₂ Nanoparticles in a Vertical Circulating Photocatalytic Reactor. *International Journal of Photoenergy*, 1–8.
- Vaghri, E., Dorrnian, D., and Ghoranneviss, M. (2018). Effects of CTAB concentration on the quality of graphene oxide nanosheets produced by green laser ablation. *Materials Chemistry and Physics*. 203: 235–242.