

AKTIVITAS FOTODEGRADASI FENOL DENGAN VARIASI SUHU DEGRADASI MENGGUNAKAN KOMPOSIT TiO₂-CNT(cocoPAS)

Nadhia Gasani Putri¹⁾, Desi Heltina²⁾, Panca Setia Utama²⁾

¹⁾Mahasiswa Program Studi Sarjana Teknik Kimia, ²⁾Dosen Jurusan Teknik Kimia
Laboratorium Pemisahan dan Pemurnian
Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik Universitas Riau
Kampus Bina Widya Jl. HR Soebrantas KM 12,5 Pekanbaru, 28293
Email: nadhia.gasaniputri@student.unri.ac.id

ABSTRACT

Phenols found in the wastewater of some industries have acute toxicity. The photocatalysis process can be used to degrade organic compounds such as phenols. To increase the photocatalytic activity of TiO₂, a composite formation was formed between TiO₂ and carbon nanotubes (CNT). Before being composited, CNT dispersion was carried out using cocoPAS surfactant as dispersing agent. The purpose of this study is to determine the effect of degradation temperature on phenol degradation. The process of making TiO₂-CNT(cocoPAS) composites begins by dispersing CNT with cocoPAS surfactants and then composite with TiO₂. Photocatalytic activity of the TiO₂-CNT(cocoPAS) composite was tested at an initial phenol concentration of 30 ppm with variation of degradation temperature of 30,40 and 50°C for 4 hours under UV light. Morphology of TiO₂-CNT(cocoPAS) composites were characterized using SEM and phenol concentrations were characterized using a UV-Vis spectrophotometer. The highest degradation of phenols by TiO₂-CNT(cocoPAS) composites at the initial phenol concentration of 30 ppm was at the degradation temperature of 50°C, which was 35.59%.

Keywords : photocatalysis, composite, TiO₂, CNT, cocoPAS, phenol, temperature

1. PENDAHULUAN

Fenol merupakan senyawa organik yang sering ditemukan dalam limbah cair industri seperti industri petrokimia dan industri plastik. Senyawa fenol mempunyai toksisitas yang tinggi, emisi bau yang kuat, dan bersifat bioakumulasi sehingga berpotensi menjadi senyawa karsinogenik [Barakat, dkk., 2013]. Metode untuk menghilangkan (mendegradasi) fenol telah banyak dilakukan, namun, memerlukan regenerasi bahan, tahapan proses yang banyak, dan dapat menghasilkan senyawa polutan lain dalam konsentrasi

yang tinggi [Dang, dkk., 2016]. Proses fotokatalisis merupakan proses yang dapat digunakan untuk degradasi senyawa polutan organik menjadi CO₂ dan H₂O sehingga lebih ramah lingkungan [Rahmani, dkk., 2019].

Degradasi senyawa fenol menggunakan proses fotokatalisis disebut juga fotodegradasi fenol. Proses ini akan mengeksitasi fotokatalis sehingga menghasilkan elektron dan *hole* yang masing-masing akan bereaksi menghasilkan pengoksidasi kuat yaitu radikal hidroksil (OH•) yang akan

menguraikan senyawa organik [Safni, dkk., 2019]. TiO₂ merupakan salah satu fotokatalis semikonduktor yang digunakan dalam proses fotokatalisis. Keunggulan fotokatalis TiO₂ yaitu, memiliki stabilitas kimia, mekanik dan termal yang tinggi, dan mempunyai kemampuan oksidasi yang kuat [Sucahya, dkk., 2016]. Namun, laju rekombinasi antara elektron dan *hole* pada TiO₂ cukup tinggi sehingga dapat menurunkan aktivitas fotokatalis [Barakat, dkk., 2013].

Beberapa perlakuan dilakukan untuk memodifikasi TiO₂ sehingga dapat meningkatkan aktivitas fotokatalis TiO₂, salah satunya dengan membentuk komposit antara TiO₂ dan material lainnya [Shawabkeh, dkk., 2010]. Salah satu material yang dapat meningkatkan kinerja fotokatalitik yaitu *carbon nanotubes* (CNT) dengan membentuk komposit TiO₂-CNT [Gangu, dkk., 2019]. CNT dapat menjadi *electron-acceptor* untuk menurunkan laju rekombinasi dari fotokatalis TiO₂ [Alwash, dkk., 2018].

Namun, CNT cenderung membentuk kumpulan (*aggregate*) saat digabungkan dengan material lain dikarenakan ikatan van der Waals nya yang sangat kuat [Li dan Qiu, 2019]. Maka dari itu, dilakukan modifikasi permukaan CNT sebelum dikompositkan dengan TiO₂. Hal tersebut bertujuan untuk mendispersi CNT agar *aggregate* yang terbentuk agar terbentuk ikatan yang kuat antara TiO₂ dan CNT. Salah satu modifikasi permukaan CNT yang dapat dilakukan yaitu dengan interaksi ikatan non-kovalen antara surfaktan dengan permukaan CNT [Sayeed, dkk., 2013].

Salah satu jenis surfaktan anionik sintetis yang dapat menjadi pendispersi CNT yaitu *Sodium dodecyl sulfate* (SDS) [Li dan Qiu, 2019]. Namun, surfaktan sintetis dapat berpotensi mencemari lingkungan, sehingga surfaktan sintetis dapat digantikan

dengan bahan yang *bio-degradable*, yaitu surfaktan cocoPAS (*coconut-oil based primary alkyl sulfate*). Surfaktan cocoPAS merupakan surfaktan anionik turunan dari surfaktan SDS yang terbuat dari minyak kelapa [Richards, dkk., 2009].

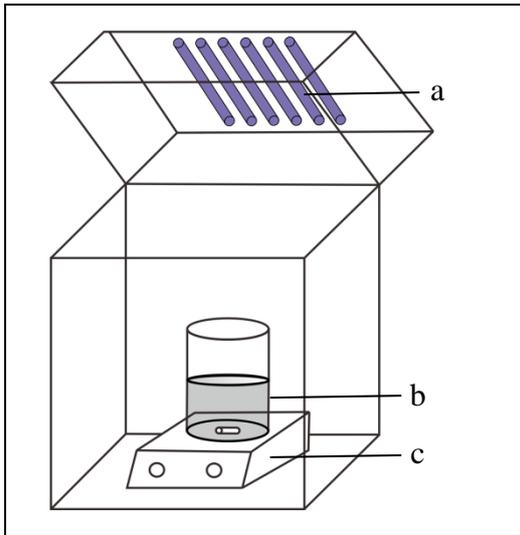
Suhu degradasi adalah salah satu faktor yang dapat mempengaruhi proses fotokatalisis. Hal tersebut dikarenakan suhu dapat mempengaruhi reaksi yang terjadi selama proses fotokatalisis [Wahab dan Husain, 2016]. Pada penelitian ini akan dilakukan sintesis komposit TiO₂-CNT dengan dispersi CNT menggunakan surfaktan cocoPAS untuk proses fotodegradasi fenol dengan melakukan variasi suhu degradasi yaitu 30, 40, dan 50°C. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh suhu degradasi terhadap degradasi fenol

2. METODOLOGI PENELITIAN

2.1 Bahan dan Alat yang Digunakan

Bahan yang digunakan pada penelitian ini yaitu titanium oksida (TiO₂ P25), *multi-walled carbon nanotube* (MWCNT), surfaktan cocoPAS (*coconut-oil based primary alkyl sulfate*), HNO₃ 1 M, akuades dan fenol.

Alat yang digunakan pada penelitian ini yaitu neraca analitis, gelas kimia 250 ml dan 1000 ml, sonikator, rangkaian alat vakum, oven, *magnetic stirrer*, indikator universal, pipet ukur 10 ml, rangkaian alat kalsinasi (*fixed bed reactor* dan gas nitrogen), saringan 300 mesh, *centrifuge*, botol sampel 5 ml 25 buah serta rangkaian alat fotoreaktor untuk uji kinerja komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) yang dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Rangkaian alat fotoreaktor (a) lampu UV (b) larutan fenol (c) *magnetic stirrer*

2.2 Variabel Penelitian

Variabel tetap pada pembuatan komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) adalah massa CNT 1 gram, massa cocoPAS 0,5 gram, massa CNT(cocoPAS) 0,015 gram, massa TiO₂ 1 gram, dan suhu kalsinasi 400°C selama 2 jam. Variabel tetap pada proses fotodegradasi yaitu massa komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) 0,3 gram, konsentrasi awal fenol 30 ppm, waktu degradasi 4 jam dan lampu yang digunakan adalah lampu UV 60 watt. Sementara variabel berubah pada penelitian ini adalah suhu degradasi yaitu 30, 40, dan 50°C.

2.3 Prosedur Penelitian

Penelitian dimulai dengan dispersi CNT dengan menggunakan surfaktan cocoPAS. Satu gram CNT ditambahkan dengan 0,5 gram surfaktan cocoPAS dalam 100 ml akuades. Selanjutnya, campuran tersebut disonikasi selama 1 jam, dan dikeringkan menggunakan rangkaian alat vakum, sehingga diperoleh padatan CNT(cocoPAS). Padatan tersebut dikeringkan menggunakan oven selama 1-2 jam pada suhu 110°C.

CNT(cocoPAS) sebanyak 0,015 gram dilarutkan dalam 100 ml akuades dan kemudian disonikasi selama 30 menit. Setelah itu, ditambahkan 1 gram TiO₂ dan disonikasi kembali selama 30 menit. Selanjutnya, untuk mengatur pH campuran menjadi pH 3, diteteskan beberapa tetes HNO₃ 1 M pada larutan. Kemudian, larutan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan pengadukan 300 rpm selama 3 jam. Setelah itu, larutan dikeringkan pada suhu 110°C selama 1-2 jam. Kemudian, padatan yang diperoleh dikalsinasi menggunakan rangkaian alat kalsinasi pada suhu 400°C selama 2 jam.

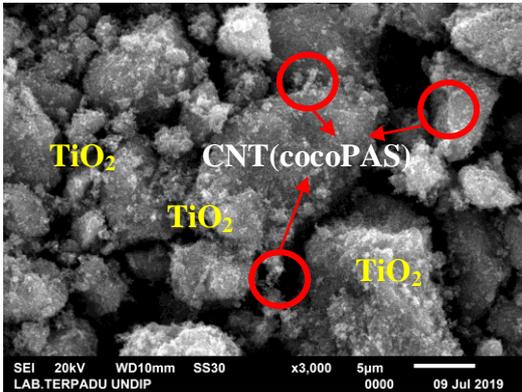
Uji kinerja dilakukan dalam fotoreaktor. Larutan fenol dibuat dengan konsentrasi awal fenol 30 ppm dalam 300 ml. Proses berlangsung dengan larutan yang diaduk pada kecepatan 300 rpm. Suhu degradasi yang digunakan sesuai dengan variasi yaitu 30, 40, dan 50°C. Komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) dimasukkan sebanyak 0,3 gram dan dilarutkan dalam 300 ml larutan fenol. Larutan sampel diambil setiap 30 menit selama 4 jam. Kemudian sampel dianalisa menggunakan spektrofotometer UV-Vis.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Karakterisasi Komposit TiO₂-CNT(cocoPAS)

Pada penelitian ini diperoleh morfologi komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) dari hasil karakterisasi SEM (Gambar 2). Morfologi komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) dapat dilihat dengan adanya gabungan antara morfologi TiO₂ yang berbentuk agregat dan morfologi CNT(cocoPAS) yang berbentuk silinder panjang serabut. Morfologi komposit didominasi oleh TiO₂ disebabkan jumlah massa TiO₂ yang lebih dominan dibandingkan dengan CNT(cocoPAS), sehingga pada

hasil SEM morfologi CNT(cocoPAS) hanya sedikit. CNT dapat berikatan dengan TiO₂ melalui modifikasi permukaan CNT menggunakan surfaktan cocoPAS melalui ikatan non-kovalen, yaitu gaya elektrostatis [Meng, dkk., 2009].



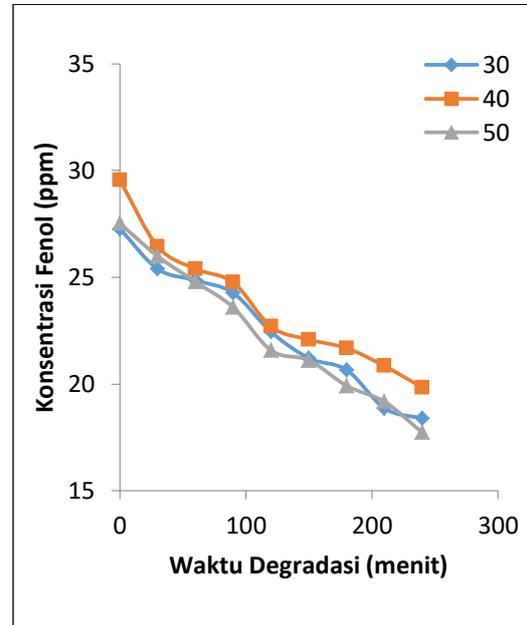
Gambar 2. Morfologi komposit TiO₂-CNT(cocoPAS)

3.2 Pengaruh Suhu Degradasi terhadap Degradasi Fenol

Penurunan konsentrasi fenol dapat dilihat dari analisa spektrofotometer UV-Vis. Profil variasi suhu degradasi (30, 40, dan 50°C) pada konsentrasi awal fenol 30 ppm dapat dilihat pada Gambar 3. Pada Gambar 3 dapat dilihat bahwa komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) dapat menurunkan konsentrasi fenol dalam berbagai suhu degradasi. Penurunan konsentrasi fenol yang paling signifikan terjadi pada suhu degradasi 50°C. Hal ini sesuai dengan penelitian Singh, dkk., [2016] yang menyatakan bahwa suhu merupakan salah satu faktor yang paling signifikan yang mempengaruhi perilaku fotokatalitik TiO₂.

Suhu degradasi dapat mempengaruhi reaksi pada proses fotokatalisis. Penurunan konsentrasi yang signifikan pada suhu 50°C dikarenakan semakin meningkatnya suhu maka akan terjadi peningkatan laju reaksi antara fenol dan OH•.

Peningkatan laju reaksi menyebabkan meningkatnya frekuensi tumbukan molekul fenol dengan komposit [Shawabkeh, dkk., 2010].



Gambar 3. Pengaruh suhu degradasi terhadap penurunan konsentrasi fenol

Persamaan yang mendeskripsikan hubungan antara suhu dan laju reaksi adalah persamaan Arrhenius yang dapat dilihat pada persamaan (1) dan (2) sebagai berikut:

$$k = Ae^{\frac{Ea}{RT}} \dots \dots \dots (1)$$

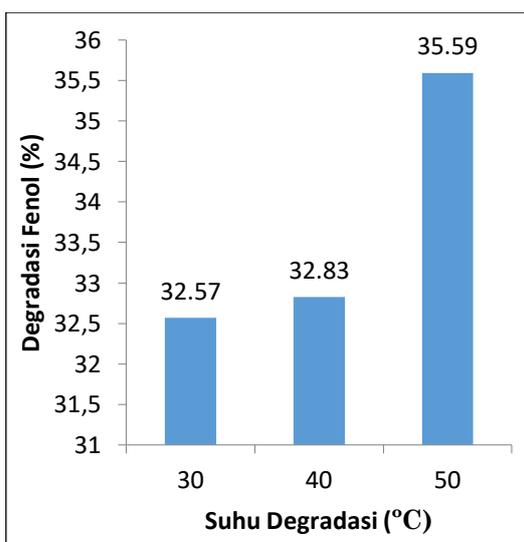
$$\ln k = \ln A - \ln \frac{Ea}{RT} \dots \dots \dots (2)$$

dimana k adalah konstanta laju reaksi, A adalah faktor frekuensi atau faktor pre-eksponensial, Ea adalah energi aktivasi, R adalah konstanta gas, dan T adalah suhu [Wahab dan Husain, 2016]. Menurut Barakat, dkk., [2013], peningkatan suhu dapat meningkatkan energi kinetik dari fenol sehingga dapat meningkatkan frekuensi tumbukan fenol dengan permukaan komposit TiO₂-CNT(cocoPAS). Peningkatan suhu juga menyebabkan laju reaksi meningkat, sehingga bisa mempercepat reaksi antara OH radikal dan molekul fenol [Gajbhiye, 2012].

Persen degradasi dapat dihitung melalui persamaan (3) sebagai berikut:

$$\text{Degradasi} = \left| \frac{C_0 - C}{C_0} \right| \times 100\% \dots \dots \dots (3)$$

dimana C_0 adalah konsentrasi awal fenol dan C adalah konsentrasi fenol pada waktu tertentu. Pada Gambar 4 dapat dilihat bahwa pengaruh suhu degradasi terhadap degradasi fenol. Pada suhu 50°C untuk konsentrasi awal fenol 30 ppm, dihasilkan persen degradasi yang paling tinggi. Maka dari itu, semakin meningkat suhu, maka akan semakin tinggi persen degradasi fenol yang dihasilkan. Kondisi terbaik degradasi fenol menggunakan komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) pada konsentrasi awal fenol 30 ppm adalah pada variasi suhu degradasi 50°C, yaitu 35,59%.



Gambar 4. Pengaruh variasi suhu terhadap persen degradasi fenol

4. KESIMPULAN

Komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) telah berhasil disintesis dengan mendispersikan CNT dalam surfaktan cocoPAS. Uji aktivitas komposit TiO₂-CNT(cocoPAS) yang paling besar dalam mendegradasi fenol diperoleh pada suhu 50°C dengan persen degradasi sebesar 35,59%.

5. UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada RISTEKDIKTI atas pembiayaan penelitian ini pada tahun 2019.

DAFTAR PUSTAKA

- Alwash, A., Hadeel, A., Zainab, H., & Emad, Y. (2018). Potential of carbon nanotubes in enhance of photocatalyst activity. *Archives of Nanomedicine: Open Access Journal*, 1, 65-70.
- Barakat, N.A.M., Muzafar, A.K., Ioannis, S.C., & Hak, Y.K. (2013). Influence of temperature on the photodegradation process using Ag-doped TiO₂ nanostructures: Negative impact with the nanofibers. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 366, 333-340.
- Dang, T.T.T., Le,S.T.T., Channel, D.,Khanitchaidecha, W.,&Nakaruk, A. (2016). Photodegradation mechanisms of phenol in the photocatalytic process. *Research on Chemical Intermediates*, 42, 5961-5974.
- Gajbhiye, S.B. (2012). Photocatalytic degradation study of methylene blue solutions and its application to dye industry effluent. *International Journal of Modern Engineering Research*, 2, 1204-1208.
- Gangu, K.K., Suresh, M., & Sreekantha, B.J. (2019). A review on novel composites of MWCNTs mediated semiconducting materials as photocatalysts in water treatment. *Science of the Total Environment*, 646, 1398-1412.

- Li, H., & Yanhua, Q. (2019). Dispersion, sedimentation and aggregation of multi-walled carbon nanotubes as affected by single and binary mixed surfactants. *Royal Society Open Science*, 6, 1-9.
- Meng, L., Chuanlong, F., & Qinghua, L. (2009). Advanced technology for functionalization of carbon nanotubes. *Progress in Natural Science*, 19, 801-810.
- Rahmani, A., Hadi, R. & Somayeh, B. (2019). Photocatalytic degradation of phenolic compound (phenol, resorcinol and cresol) by titanium dioxide photocatalyst on ordered mesoporous carbon (CMK-3) support under UV irradiation. *Desalination and Water Treatment*, 144, 224-232.
- Richards, C., Mansur, S.M., & Gordon, J.T.T. (2009). Formulating liquid detergents with naturally derived surfactants-phase behaviour, crystallisation and rheo-stability of primary alkyl sulfates based on coconut oil. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 338, 119-128.
- Safni, Mechy R.W., Khoiriah, & Yulizar, Y. (2019). Photodegradation of phenol using N-doped TiO₂ catalyst. *Molekul*, 14, 6-10.
- Sayeed, MD. A., Young, H.K., Younjin, P., Gopalan, A.I., Kwang-Pill, L., & Sang-June, C. (2013). Non-covalent bonding interaction of surfactants with functionalized carbon nanotubes in proton exchange membranes for fuel cell applications. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 13, 7424-7429.
- Singh, T., Neha, S., Mishra, P.K., Bathiya, A.K., & Nand, L.S. (2016). Application of TiO₂ nanoparticle in photocatalytic degradation of organic pollutants. *Material Science Forum*, 855, 20-32.
- Shawabkeh, R.A., Omar, A.K., & Gasan, I.B.(2010). Photocatalytic degradation of phenol using Fe-TiO₂ by different illumination sources. *International Journal of Chemistry*, 2, 10-18.
- Sucahya, T.N., Novie, P., & Asep, B.D.N. (2016). Review: fotokatalis untuk pengolahan limbah cair. *Jurnal Integrasi Proses*, 6, 1-15.
- Wahab, H.S., & Ahmed, A.H. (2016). Photocatalytic oxidation of phenol red onto nanocrystalline TiO₂ particles. *Journal Nanostucture Chemical*, 6, 261-274.