

KINERJA KOMPOSIT MAGNETIK GRAPHENE/TiO₂/Fe₃O₄ DALAM MENDEGRADASI FENOL DAN PEMISAHAN HASIL FOTODEGRADASI FENOL

¹⁾ Nia Adharianti, ²⁾ Desi Heltina, ³⁾ Aman

¹⁾ Mahasiswa Program Studi Teknik Kimia ²⁾ Dosen Jurusan Teknik Kimia

³⁾ Dosen Jurusan Teknik Kimia

Fakultas Teknik Universitas Riau

Kampus Binawidya Jl. HR. Subranta Km 12,5 Pekanbaru 28293

nia.adharianti97@gmail.com

ABSTRACT

Titanium dioxide (TiO₂) is the most widely used material in the photocatalysis process, one of which is to degrade phenol waste. The photocatalysis process can degrading waste compounds become more environmentally friendly compounds, namely CO₂ and H₂O. To increase the adsorption ability and photocatalysis process efficiency, titanium dioxide was added with carbon-based materials namely graphene. The addition of magnetic materials such as Fe₃O₄ is expected to facilitate the process of separating photocatalyst with magnetic fields. This research was aims to get graphene/TiO₂/Fe₃O₄ composites for separation of phenol photodegradation results and characterizing graphene/TiO₂/Fe₃O₄ composite. Procedure of this research started with the modification of graphene with cocoPAS surfactant, synthesis of Fe₃O₄, and synthesis of graphene/TiO₂/Fe₃O₄ composite, performance test of composite using phenol and then magnetic separation test. Morphology of composite graphene/TiO₂/Fe₃O₄ were characterized using SEM analysis. Concentration of phenol photodegradation results were analized using UV-Vis spectrophotometer. The synthesized graphene/TiO₂/Fe₃O₄ composite is successfully in degrading phenol by 57,45 % with the magnetic separation test is 60 minutes.

Keywords: photodegradation, magnetic composite, titanium dioxide, graphene, magnetite.

1. PENDAHULUAN

Fenol merupakan salah satu senyawa yang terdapat pada limbah cair industri. Senyawa fenol dihasilkan oleh berbagai industri termasuk industri plastik, kulit, kertas, kayu, cat dan kilang minyak (Vilhunnen, dkk., 2010). Fenol bersifat karsinogenik yang sangat berbahaya bagi manusia. Metode pengolahan limbah fenol telah banyak dikembangkan, salah satunya yaitu dengan teknologi fotokatalisis. Fotokatalisis banyak diaplikasikan untuk pendegradasian limbah cair karena dapat menguraikan senyawa limbah menjadi senyawa yang lebih ramah lingkungan, yaitu CO₂ dan H₂O (Tong, dkk., 2012; Bhanvase, dkk., 2016). Titanium oksida (TiO₂) merupakan fotokatalis yang paling banyak digunakan untuk pengolahan air

limbah karena memiliki sifat kimia yang stabil, daya degradasi yang kuat, tidak toksik dan murah (Scanlon, dkk., 2013). Untuk meningkatkan kemampuan adsorpsi dan efektivitas fotokatalisisnya, TiO₂ dikompositkan dengan material berbasis karbon seperti karbon aktif, *carbon nanotube* dan *graphene*. Dibandingkan dengan *carbon nanotube*, *graphene* memiliki keuntungan yaitu luas permukaannya yang tinggi (Wang, dkk., 2011). Salah satu karakteristik yang paling menarik dari *graphene* adalah susunan atom karbon sangat teratur, luas permukaan spesifik, dan konduktivitas termal yang sangat baik (Brownson & Banks, 2016).

Penggabungan bahan TiO₂ dan *graphene* masih memiliki kekurangan

yaitu hasil morfologi komposit menunjukkan terjadi aglomerasi dan efek sinergi antara ikatan TiO_2 dan *graphene* yang rendah. Metode yang efektif untuk mengendalikan morfologi dan struktur komposit tersebut adalah dengan memodifikasi komposit $\text{TiO}_2/\text{graphene}$ dengan surfaktan. *cocoPAS* atau *coconut oil-based primary alkyl sulphate* merupakan surfaktan anionik yang ramah lingkungan karena terbuat dari minyak kelapa sehingga mudah didegradasi oleh alam (*biodegradable*) (Huang, dkk., 2013; Richard, dkk., 2009).

Penggunaan komposit $\text{TiO}_2/\text{graphene}$ dalam aplikasi fotodegradasi senyawa organik masih memiliki kekurangan yaitu sulitnya pemisahan bahan katalis dari larutan setelah proses fotodegradasi (Fadillah dan Serunting, 2019). Metode yang efektif dan tepat untuk mempermudah proses pemisahan adalah dengan menggabungkan fotokatalis dengan bahan magnetik, sehingga setelah digunakan fotokatalis dapat dipisahkan kembali dari larutan dengan menggunakan magnet eksternal (Fisli, dkk., 2013). Salah satu bahan magnetik yang telah banyak digunakan untuk proses fotokatalitik adalah nanopartikel magnetik Fe_3O_4 atau magnetit, yang bersifat superparamagnetik (Wang, dkk., 2018). Magnetit menunjukkan kemagnetan paling kuat diantara oksida-oksida besi yang lain (Teja & Koh, 2009).

Pada penelitian ini, modifikasi dengan surfaktan pada komposit $\text{graphene}/\text{TiO}_2$ diharapkan dapat meningkatkan kinerja fotokatalis dalam mendegradasi senyawa fenol. Dan juga penambahan bahan magnetik Fe_3O_4 diharapkan dapat memudahkan dalam pemisahan katalis dan penyederhanaan proses.

2. METODOLOGI PENELITIAN

2.1 Bahan dan Alat yang Digunakan

Bahan yang digunakan yaitu *graphene*, TiO_2 P25, *cocoPAS* (*Coconut*

Oil-Based Primary Alkyl Sulphate), HNO_3 , $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, HCl , NH_4OH , akuades, dan fenol. Peralatan yang digunakan yaitu sonikator, *magnetic stirrer*, magnet batangan, botol sampel, oven, pompa vakum, indikator universal, dan rangkaian alat fotodegradasi untuk uji kinerja komposit $\text{graphene}/\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$.

2.2 Variabel Penelitian

Variabel tetap pada penelitian ini adalah konsentrasi awal fenol yaitu 10 ppm, waktu fotodegradasi selama 4 jam dan massa komposit $\text{graphene}/\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$ yaitu 0,3 gram.

2.3 Prosedur Penelitian

2.3.1 Sintesis Fe_3O_4

$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (2,6 gram) dan $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (1 gram) dilarutkan ke dalam 5,15 ml HCl 0,1 dan diaduk. Selanjutnya ditambahkan 7,5 ml akuades diikuti dengan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* selama 15 menit. Larutan NH_4OH 1,5 N ditambahkan ke dalam larutan diikuti dengan pengadukan selama 1 jam. Larutan kemudian dicuci menggunakan akuades hingga pH larutan menjadi 7. Endapan yang diperoleh dikeringkan, dan padatan digerus hingga diperoleh bubuk Fe_3O_4 .

2.3.2 Sintesis Komposit

Fe_3O_4 hasil sintesis diambil sebanyak 0,3 gram. 1 gram TiO_2 dan 0,015 gram *graphene* (*cocoPAS*) dilarutkan dengan 100 ml akuades. HNO_3 ditambahkan ke dalam campuran hingga pH menjadi 3, dilanjutkan dengan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* selama 30 menit dan sonikasi menggunakan ultrasonikator selama 30 menit. 0,3 gram Fe_3O_4 ditambahkan ke dalam campuran. Selanjutnya dilakukan pengadukan dan sonikasi selama 30 menit. Campuran kemudian dikeringkan. Padatan yang diperoleh diayak menggunakan ayakan 300 *mesh* untuk memperoleh bubuk komposit $\text{graphene}/\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$.

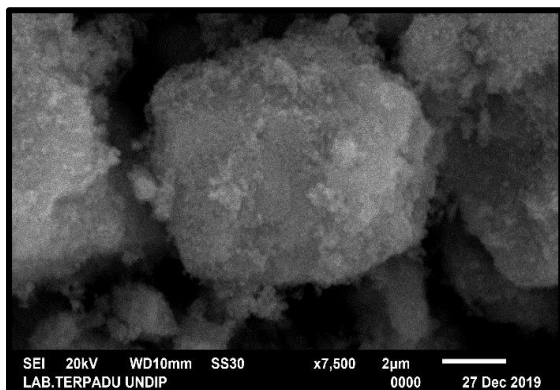
2.3.3 Uji Kinerja Komposit *Graphene/TiO₂/Fe₃O₄*

Uji kinerja komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* dilakukan dengan menggunakan larutan fenol. Sebanyak 0,3 gram komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* dimasukkan ke dalam 300 ml larutan fenol 10 ppm. Fotodegradasi dilakukan selama 4 jam menggunakan lampu merkuri 250 W sebagai sumber cahaya (lampu menyala). Sampel diambil setiap 30 menit sekali selama 4 jam dengan menggunakan pipet tetes. Konsentrasi senyawa fenol terdegradasi diperoleh dengan menggunakan analisa Spektrofotometer UV-Vis. Setelah proses fotodegradasi selesai, selanjutnya dilakukan pemisahan dengan menggunakan magnet batangan untuk memisahkan komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* dari larutan hasil fotodegradasi.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Karakterisasi Komposit *Graphene/TiO₂/Fe₃O₄*

Morfologi komposit dikarakterisasi dengan menggunakan SEM (Gambar 1) dengan perbesaran 7500 kali. Pada komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* terdapat *graphene* dan butiran kecil yang menempel pada *graphene* menunjukkan TiO₂. TiO₂ tersebar pada permukaan komposit. Pada komposit, bahan magnetik Fe₃O₄ terlihat berbentuk butiran kecil bergerombol (*cluster*). Hasil analisa SEM tersebut menunjukkan bahwa komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* telah berhasil disintesis.



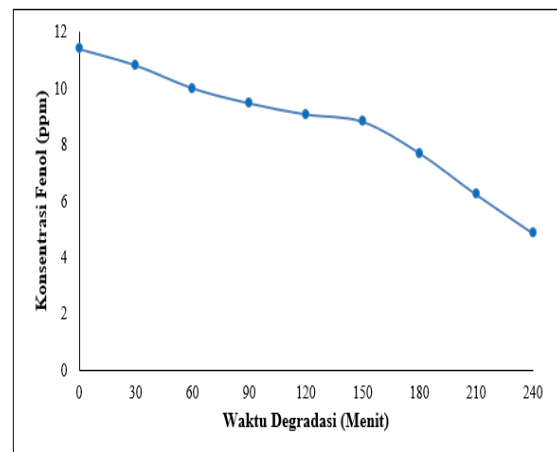
Gambar 1. Karakterisasi SEM komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄*

3.2 Uji Kinerja Komposit *Graphene/TiO₂/Fe₃O₄*

Uji kinerja komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* dalam mendegradasi fenol dapat dilihat pada Gambar 2. Pada proses degradasi, kondisi tanpa cahaya, diharapkan terjadi proses adsorpsi oleh *graphene* sebagai adsorben yang akan mendukung proses fotokatalisis dengan menarik polutan organik (fenol) untuk mendekat dan didegradasi oleh komposit. Dari grafik pada Gambar 2 dapat dilihat bahwa konsentrasi fenol semakin menurun dengan bertambahnya waktu fotodegradasi.

Persentase degradasi fenol dihitung dengan menggunakan persamaan berikut (Banerjee, dkk., 2018).

$$\% \text{ Degradasi} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \%$$



Gambar 2. Uji kinerja komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* menggunakan fenol

Persentase degradasi fenol yang diperoleh komposit *graphene/TiO₂/Fe₃O₄* adalah 57,45%. Persentase degradasi komposit yang diperoleh cukup rendah. Hal ini disebabkan karena adanya Fe₃O₄ dalam komposit, sehingga permukaan TiO₂ tertutupi oleh partikel Fe₃O₄ yang tersebar pada permukaan komposit. Hal ini menyebabkan TiO₂ tidak akan

mendapatkan cahaya yang cukup untuk mengaktivasi fotokatalis. Berkurangnya kuantitas cahaya yang mengenai sisi aktif fotokatalis ini menyebabkan sedikitnya radikal hidroksil ($\cdot\text{OH}$) yang terbentuk, sehingga kemampuan komposit dalam mendegradasi senyawa fenol menjadi berkurang.

Namun, dengan penambahan Fe_3O_4 ini juga dapat memberikan keuntungan pada proses pemisahan komposit magnetik dari larutan hasil fotodegradasi. Waktu pemisahan sampai komposit terpisah dari larutan dan larutan menjadi bening adalah 60 menit. Waktu pemisahan ini dipengaruhi oleh Fe_3O_4 yang tersebar di permukaan komposit dan juga struktur Fe_3O_4 yang berbentuk bergerombol atau *cluster* (Gambar 1) sehingga membuat respon magnetik komposit akan lebih kuat dan karakteristik superparamagnetik yang merupakan sifat dari Fe_3O_4 dapat dipertahankan (Slamet, dkk., 2018). Komposit *graphene*/ TiO_2 / Fe_3O_4 yang dapat dipisahkan dengan menggunakan magnet batangan tersebut membuktikan bahwa komposit magnetik tersebut telah berhasil disintesis.

4. KESIMPULAN

Komposit *graphene*/ TiO_2 / Fe_3O_4 telah berhasil disintesis. Uji kinerja komposit *graphene*/ TiO_2 / Fe_3O_4 dalam mendegradasi fenol yaitu sebesar 57,45% dan waktu pemisahan komposit magnetik dari larutan hasil fotodegradasi menggunakan magnet batangan adalah 60 menit.

5. UCAPAN TERIMA KASIH

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

DAFTAR PUSTAKA

Banerjee, S., Benjwal, P., Singh, M., & Kar, K.K. (2018). Graphene oxide (rGO)-Metal Oxide (TiO_2 / Fe_3O_4) Based Nanocomposites For The Removal Of Methylene Blue.

Applied Surface Science, 439, 560-568.

Bhanvase, B. A., Shende, T. P., & Sonawane, S. H. (2016). A Review on Graphene- TiO_2 and Doped Graphene- TiO_2 Nanocomposite Photocatalyst for Water And Wastewater Treatment. *Environmental Technology Reviews*, 6, 1-15.

Brownson, D.A.C. & Banks, C.E. (2016). Handbook Of Graphene Electrochemistry. London: Springer-Verlag.

Fadillah, G., & Serunting, M. A. (2019). Preliminary Study of Photocatalytic Degradation of Methylene Blue Dye using Magnetic Alginate/ Fe_3O_4 (Alg/ Fe_3O_4) Nanocomposites. *Jurnal Eksakta*, 19, 26-34.

Fisli A, Saridewi R, Dewi S H & Gunlazuardi J. (2013). Preparation and Characterization of Fe_3O_4 / TiO_2 Composites by Heteroagglomeration *Advanced Materials Research*, 626, 131-7.

Huang, H., Fang, J.W., Xia, Y., Tao, X.Y., Gan, Y.P., Du, J., Zhu, W.J., & Zhang, W.K. (2013). Construction Of Sheet-Belt Hybrid Nanostructures From One-Dimensional Mesoporous TiO_2 (B) Nanobelts and Graphene Sheets For Advanced Lithium-Ion Batteries, *Journal of Material Chemistry*, 1, 2495-2500.

Richards, C., Mohammadi, M., & Tiddy, G. (2009). Formulating Liquid Detergents with Naturally Derived Surfactants-Phase Behaviour, Crystallisation and Rheo-Stability of Primary Alkyl Sulphates Based on Coconut Oil. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 338, 119-128.

Scanlon, D. O., Dunnill, C. W., Buckeridge, J., Shevlin, S. A., Logsdail, A. J., Woodley, S. M.,

- Catlow, C. R. A., Powell, M. J., Palgrave, R. G., Parkin, I. P., Watson, G. W., Keal, T. W., Sherwood, P., Walsh, A., & Sokol, A. A. (2013). Band Alignment of Rutile and Anatase TiO₂. *Nature Materials*, 12, 798–801.
- Slamet, Wulan, P.P.D.K., Heltina, D., Fisli, A., & Philo, D. (2018). Synthesis and Characterization of Magnetically Modified Composites (TiNT/CNT/Fe₃O₄), *Journal of Physics: Conference Series*, 1091, 12-24.
- Teja, A.S., & Koh, P. (2009). Synthesis, Properties, and Application of Magnetic Iron Oxide Nanoparticles. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 55, 22-45.
- Tong, H., Ouyang, S., Bi, Y., Umezawa, N., Oshikiri, M., Ye, J. (2012). Nano-photocatalytic Materials: Possibilities and Challenges. *Advanced Materials*, 24, 229-251.
- Vilhunen, S., Rokhina, E. V., & Virkutyte, J. (2010). Evaluation of UV LEDs Performance in Photochemical Oxidation of Phenol in the Presence of H₂O₂. *Journal of Environmental Engineering*, 136, 274-280.
- Wang, S., & Zhou, S. (2011). Photodegradation of Methyl Orange by Photocatalyst of CNTs/P-TiO₂ Under UV and Visible-light Irradiation. *Journal of Hazardous Materials*, 185, 77-85.
- Wang, J., Xu, X., Cao, F., Wang, Y., Li, S., & Qin, G., (2018). In Situ Fabrication Of A-Fe₂O₃/Caf₂O₄ P-N Heterojunction With Enhanced VOCs Photodegradation Activity. *Advanced Powder Technology*, 30, 590-595.