

PEMANFAATAN ZEOLIT ALAM CLINOPTILOLITE-Ca SEBAGAI PENDUKUNG KATALIS ZnO UNTUK MENDEGRADASI ZAT WARNA METHYL ORANGE DENGAN METODA FOTOLISIS

Zilfa^{*1}, Rahmiana Zein², Teti Nurhayatul Rahmi^{1,2}

¹Laboratorium Analisis Terapan, Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Andalas

²Laboratorium Kimia Lingkungan, Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Andalas
Kampus Limau Manis, Padang, 25163, Indonesia

*Email: zilfa@sci.unand.ac.id

Abstrak

Penelitian mengenai degradasi zat warna *Methyl Orange* dengan metoda fotolisis menggunakan katalis ZnO/zeolit telah dilakukan. Penelitian ini bertujuan untuk mengurangi kadar zat warna *Methyl Orange* yang diketahui berbahaya bagi lingkungan dan kesehatan. Pada penelitian ini digunakan zat warna *Methyl Orange* dengan konsentrasi 6 mg/L, selanjutnya didegradasi secara fotokatalisis dengan beberapa variasi waktu dan massa katalis untuk mengetahui kondisi optimum dari degradasi *Methyl Orange*. Analisis hasil degradasi diukur menggunakan spektrofotomet UV-VIS. Berdasarkan hasil penelitian diperoleh persentase degradasi *Methyl Orange* dengan beberapa perlakuan, yaitu dengan tanpa katalis, dengan zeolit, dengan ZnO, dan dengan ZnO/zeolit. Hasil analisis menunjukkan degradasi tanpa katalis adalah 5,83%, menggunakan zeolite 32,51%, dan menggunakan ZnO 60,09%, selama waktu irradiasi 90 menit. Selanjutnya degradasi menggunakan katalis ZnO/zeolit persentase degradasi *Methyl Orange* meningkat menjadi 93,27% (massa katalis 0,8 g dan waktu irradiasi 90 menit). Analisis hasil degradasi metil orange menggunakan FTIR didapatkan bahwa terjadi pergeseran bilangan gelombang yang menyatakan terjadinya degradasi. Karakterisasi katalis ZnO/zeolite menggunakan FTIR dan XRD tidak terjadi perubahan struktur dari ZnO/zeolite yang berarti bahwa ZnO/zeolite dapat digunakan sebagai katalis dalam degradasi *methyl orange*. Berdasarkan data tersebut dapat dikatakan bahwa katalis ZnO/zeolit berhasil meningkatkan persentase degradasi *Methyl Orange* dibandingkan menggunakan katalis ZnO saja dan zeolit saja.

Kata kunci : degradasi, fotolisis, , *Methyl Orange*, ZnO/zeolit,

Abstract

Research on the degradation of *Methyl Orange* dye by photolysis method using ZnO/zeolite catalyst has been done. This research aimed to reduce the levels of *Methyl Orange* dye which is known to be harmful to the environment and health. In this study, *Methyl Orange* dye with a concentration of 6 mg/L was used, then degraded by photocatalysis with several variations in time and catalyst mass to determine the optimum conditions for *Methyl Orange* degradation. Analysis of degradation results was measured using UV-VIS spectrophotometry. Based on the results of the study obtained the percentage of *Methyl Orange* degradation with several treatments, which are without catalyst, using zeolite, using ZnO, and using ZnO/zeolite. The analysis showed that the degradation without catalyst was 5.83%, using zeolite 32.51%, and using ZnO 60.09%, during the irradiation time of 90 minutes. Furthermore, the degradation using ZnO/zeolite catalyst, the percentage of *Methyl Orange* degradation increased to 93.27% (catalyst mass 0.8 g and irradiation time 90 minutes). Analysis of the results of methyl orange degradation using FTIR found that there was a shift in wave numbers that stated the occurrence of degradation. Characterization of ZnO/zeolite catalyst using FTIR and XRD did not change the structure of ZnO/zeolite which means that ZnO/zeolite can be used as a catalyst in methyl orange degradation. Based on these data, it can be said that the ZnO/zeolite catalyst succeeded in increasing the percentage of *Methyl Orange* degradation compared to using ZnO catalyst only and zeolite only.

Keywords : degradation, photolysis *Methyl Orange*, ZnO/zeolite

Pendahuluan

Zeolit merupakan mineral alumina silika yang mempunyai struktur rangka. Indonesia banyak sekali menghasilkan mineral diantaranya adalah zeolit. Zeolit banyak digunakan sebagai bahan penyerap, penukai ion dan sebagai support katalis (Zilfa *et al.* 2018 ; Zilfa *et al.* 2021). Sebagai bahan penyerap zeolit sudah banyak digunakan untuk menyerap bahan organik dan anorganik yang berbahaya diantaranya penyerap logam berat dan pestisida serta zat warna. Namun apabila digunakan sebagai bahan penyerap akan menimbulkan limbah baru yang memerlukan penanganan lebih lanjut. Selain sebagai bahan penyerap zeolit telah banyak digunakan sebagai support katalis diantaranya adalah support katalis TiO_2 , ZnO, CuO dan CaO. (TiO_2 /zeolit, ZnO/zeolit, CuO/zeolit dan CaO/zeolit) (Zilfa *et al.* 2021 ; Zilfa *et al.* 2021). Katalis ini telah digunakan sebagai pendegrasi senyawa-senyawa organik seperti pestisida dan zat warna berbahaya secara fotolisis. Dari penelitian Zilfa, dkk 2017 telah ditemukan zeolit jenis clinoptilolit-Ca di daerah bukit Salasiah Kabupaten Solok (Zilfa, Upita Septiani & Mirawati. 2020). Dari beberapa penelitian ZnO/zeolit telah digunakan sebagai katalis dalam degradasi senyawa organik secara fotolisis, sonolisis dan ozonolisis (Zilfa, Safni & Febi Rahmi 2021 ; Zilfa *et al.* 2021)

Dalam beberapa dekade terakhir industri tekstil mengalami perkembangan yang cukup pesat. Menurut laporan Badan Pusat Statistika (BPS), pertumbuhan industri tekstil pada triwulan I 2019 mengalami peningkatan yang cukup signifikan yaitu mencapai angka 18,98%. Hal ini sesuai dengan fakta yang terlihat dimana semakin banyaknya muncul industri tekstil. Namun tidak semua industri tekstil menggunakan sistem pengelolaan limbah yang memadai, terutama industri tekstil skala kecil menengah dimana pengelolaan limbah masih dilakukan secara sederhana bahkan dengan membuang limbah secara langsung ke sungai, menyebabkan pencemaran lingkungan, terutama pencemaran air (Zein *et al.* 2019).

Pencemaran air oleh limbah tekstil salah satunya disebabkan oleh zat warna sintetik. Pada proses pencelupan, zat warna sintetik tidak sepenuhnya terserap pada kain. Sekitar 10-15% zat warna tidak dapat terserap dan menjadi limbah yang dapat membahayakan. Limbah zat warna sintetik sulit terdegradasi secara alami di lingkungan sehingga dapat berdampak buruk terhadap organisme air karena menghalangi sinar matahari, memperlambat aktivitas fotosintesis dan menciptakan kondisi anaerob yang membatasi pertumbuhan biota air. Selain itu zat warna sintetik juga berdampak buruk terhadap kesehatan manusia seperti alergi, iritasi kulit, disfungsi ginjal, hati, otak, reproduksi, dan sistem syaraf (Zein *et al.* 2021 ; Ariguna I. W.S.P, Wiranti N.M & Sastrawidana I. D.K. 2017).

Zat warna sintetik yang banyak digunakan dalam industri tekstil diantaranya zat warna golongan azo ($\text{N}=\text{N}$), salah satu contoh zat warna azo adalah *methyl orange* ($\text{C}_{14}\text{H}_{14}\text{N}_3\text{NaO}_3\text{S}$, 327,34 g/mol), Methyl Orange dapat menyebabkan Hypersensitive dan alergi pada manusia, kemudian strukturnya yang stabil menyebabkan Methyl Orange sulit terdegradasi sehingga dapat berdampak buruk untuk lingkungan dan kesehatan (Zein *et al.* 2021 ; Yatmaz. H.C. Dizge N & Kurt . M.S. 2017).

Menghilangkan zat warna sintetik dapat dilakukan dengan *Advanced oxidation processes* (AOPs). Adapun beberapa contoh metode AOPs diantaranya ozonasi, fotolisis, UV/ H_2O_2 , fotokatalisis, fenton, foto-fenton, dan elektrofenton. AOPs didasarkan pada produksi radikal hidroksi ($\bullet\text{OH}$), dimana zat warna sintetik akan berubah menjadi

senyawa sederhana seperti CO₂ dan H₂O menggunakan oksidan kuat ini (Yatmaz, H.C. Dizge N & Kurt . M.S. 2017). Pada penelitian ini peneliti menggunakan proses fotokatalitik untuk mendegradasi zat warna sintetik. Proses ini dipilih karena efisiensinya yang tinggi, tidak beracun, biaya yang relatif murah, stabilitas bahan kimia, serta kemungkinan melakukan reaksi pada suhu kamar (zilfa. Safni. & Febi Rahmi . 2021 ; Davari, N. Farhadian, M. & Solaimany Nazar, A. R. 2019)

Katalis yang digunakan pada penelitian ini adalah ZnO. Beberapa penelitian sebelumnya telah menggunakan ZnO sebagai fotokatalis dalam mendegradasi berbagai polutan seperti zat warna sintetik, logam berat, senyawa fenol, dan lain-lain, namun penggunaan ZnO saja kurang efektif dalam mendegradasi polutan organik karna ZnO memiliki daya adsorpsi yang lemah, sementara proses fotokatalitik terjadi pada fase teradsorpsi, sehingga dibutuhkan penambahan adsorben sebagai *support* katalis untuk meningkatkan efisiensi degradasi (Amornpitoksuk, P. Suwanboon, S & Randorn, C. 2018 ; Naimah, S., Jati, B. N., Aidha, N. N., & Cahyaningtyas, A. A. 2014)

Pada penelitian ini katalis ZnO disupport dengan zeolit alam *Clinoptilolite-Ca* untuk memperluas permukaan dan memperbanyak pori dari ZnO. Zeolit alam *Clinoptilolite-Ca* digunakan sebagai pendukung fotokatalis karena stabilitas kimianya yang tinggi, permukaan berpori, serta volume partikel yang besar. Kemudian keberadaannya di alam juga berlimpah salah satunya terdapat di daerah Lubuk Salasiah, Kecamatan Solok, Sumatera Barat (Zilfa, Upita Septiani, Mirawati. 2020).

Penelitian yang dilakukan adalah degradasi zat warna methyl orange menggunakan ZnO/zeolit klinoptilolit-Ca secara fotolisis. Dalam penelitian ini dipelajari kemampuan dari katalis ZnO/zeolit dalam mendegradasi zat warna Methyl Orange (Zulfi *et al.* 2021 ; Naimah *et al.* 2014 ; Bhernama, B. G., Safni, S., & Syukri, S. 2015). Dengan beberapa faktor operasional diantaranya waktu radiasi dan massa katalis untuk mengetahui kondisi optimum dari degradasi zat warna Methyl Orange. Hasil dengradasi dianalisa menggunakan spektrofotometer UV-VIS dan FTIR. Karakterisasi katalis sebelum dan sesudah degradasi dianalisa menggunakan FTIR dan XRD (Zilfa *et al* 2021; Zilfa *et al* 2021; Zilfa, Upita Septiani, Mirawati 2020 ; Fitriyani *et al* 2017)

Metode

Bahan kimia, peralatan dan instrumentasi

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit *Clinoptilolite-Ca*, Methyl Orange (Merck), ZnO (Merck), air destilasi, HCl (Merck), NaCl (Merck), AgNO₃ (Merck).

Peralatan yang digunakan adalah ayakan mikro (450 mesh), Spektrofotometer *Ultraviolet-Visibel* (Thermo Scientific Evolution 201 *UV-Vis Spectrophotometer*), neraca analitik (AA-200, Denver Instrumen Company), Lampu (*Luster BLB 10 W-TB*) ($\lambda = 365$ nm), *centrifuge* (NASCO dengan kecepatan 3000 rpm), FT-IR (*Fourier Transfor-Infrared Spectroscopy*) (Unican Mattson Mod 7000 FT-IR), pipet takar, pipet gondok, *Handmade Irradiation Box*, dan alat-alat gelas lainnya.

Prosedur penelitian

Aktivasi Zeolit *clipnotilolit-Ca*

Zeolit digerus sampai halus kemudian diayak menggunakan ayakan 450 mesh. Sebanyak 200 g zeolit 450 mesh dimasukkan ke dalam gelas piala kemudian ditambahkan 100 mL HCl 0,2 M, lalu distirer selama 30 menit. Kemudian setelah 30 menit diukur pH kemudian dibilas dengan aquades hingga pH netral. Setelah pH netral zeolit disaring dan dioven selama 1 jam pada suhu 100 °C, selanjutnya diperoleh zeolit teraktivasi. Zeolit yang telah diaktivasi selanjutnya dijenuhkan dengan penambahan larutan NaCl 0,1 M lalu diaduk selama 1 jam. Kemudian filtratnya disaring, untuk selanjutnya diuji dengan AgNO₃. Apabila masih terbentuk endapan putih maka zeolit dicuci dengan air destilasi hingga tidak terbentuk lagi endapan putih.

Preparasi Katalis ZnO/Zeolit *clipnotilolit-Ca*

Zeolit yang telah dijenuhkan ditimbang sebanyak 400 g, ditambahkan air destilasi dan diaduk selama 5 jam, kemudian ditambahkan 16 g ZnO dengan perbandingan (25:1) gram perlahan-lahan secara bertahap sambil diaduk. Campuran kemudian disaring dengan penyaringan vakum lalu dikeringkan dengan oven pada temperatur 100 °C, selanjutnya digerus sampai halus lalu diayak menggunakan pengayak 150 mesh. Hasil ayakan dikalsinasi pada temperatur 400 °C selama 10 jam.

Penentuan Serapan Maksimum Senyawa *Methyl Orange*

Larutan *Methyl Orange* 100 mg/L dibuat dari larutan induk 1000 mg/L. Kemudian dibuat beberapa variasi konsentrasi *Methyl Orange* 2, 4, 6, 8, dan 10 mg/L dengan pengenceran. Setelah itu diukur absorbansi *Methyl Orange* dengan menggunakan spektrofotometer UV-VIS dengan rentang panjang gelombang 300-800 nm.

Penentuan Kondisi Optimum Degradasi

Penentuan Pengaruh Waktu Degradasi *Methyl Orange* Tanpa Katalis

Larutan *Methyl Orange* 6 mg/L diambil 20 mL, lalu dimasukkan ke dalam 6 petridis. Kemudian difotolisis dengan variasi waktu 30, 45, 60, 75, 90 dan 105 menit dibawah lampu UV ($\lambda=365$ nm). Diukur nilai absorbansi masing-masing dengan Spektrofotometer UV-VIS.

Penentuan Pengaruh Penambahan Jumlah Katalis ZnO/zeolit

Katalis ZnO/zeolit ditimbang sebanyak 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0 dan 1,2 g, kemudian dimasukkan ke dalam 6 petridis yang berisi 20 mL *Methyl Orange*, lalu masing-masing petridis difotolisis dibawah lampu UV ($\lambda=365$ nm) selama 90 menit. Kemudian larutan disentrifus selama 15 menit. Setelah itu diambil filtratnya lalu diukur absorbansinya dengan spektrofotometer UV-VIS.

Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Katalis ZnO/zeolit

Larutan *Methyl Orange* 6 mg/L diambil 20 mL, kemudian dimasukkan ke dalam 6 petridis. Masing-masing petridis ditambahkan katalis ZnO/zeolit dengan masa 0,8 g, lalu diirradiasi dengan variasi waktu 30, 45, 60, 75, 90 dan 105 menit dibawah lampu UV ($\lambda=365$ nm). Larutan disentrifus selama 15 menit dan diukur nilai absorbansinya dengan spektrofotometer UV-VIS.

Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Katalis ZnO

Larutan *Methyl Orange* 6 mg/L diambil 20 mL, kemudian dimasukkan kedalam 6 petridis. Masing-masing petridis ditambahkan katalis ZnO dengan massa hasil perbandingan zeolit : ZnO = 25:1 (masa ZnO $\frac{1}{26} \times 0,8 = 0,03$ g) lalu difotolisis dengan dengan variasi waktu 30, 45, 60, 75, 90, dan 105 menit dibawah lampu UV ($\lambda=365$ nm). Kemudian larutan disentrifus selama 15 menit. Setelah itu lalu diukur nilai absorbannya dengan spektrofotometer UV-VIS.

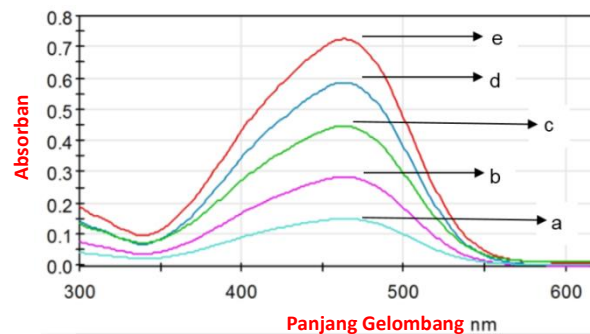
Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Katalis Zeolit

Larutan *Methyl Orange* 6 mg/L diambil 20 mL, kemudian dimasukkan kedalam 6 petridis. Masing-masing petridis ditambahkan Zeolit dengan massa hasil perbandingan 25:1 adalah 0,7 g lalu difotolisis dengan dengan variasi waktu 30, 45, 60, 75, 90, dan 105 menit dibawah lampu UV ($\lambda=365$ nm). Kemudian larutan disentrifus selama 15 menit. Setelah itu lalu diukur nilai absorbannya dengan spektrofotometer UV-VIS. Hasil degradasi zat warna *methyl orange* dianalisis menggunakan FTIR sebelum dan sesudah degradasi. Karakterisasi katalis ZnO/zeolit diukur menggunakan FTIR dan XRD

Hasil dan Pembahasan

Pengukuran Serapan Maksimum *Methyl Orange*

Panjang gelombang maksimum *Methyl Orange* dapat dilihat pada gambar 1.a. dimana puncak serapan maksimum dari *Methyl Orange* terdapat pada panjang gelombang 463 nm. Panjang gelombang ini selanjutnya digunakan untuk mengukur absorbansi dari masing-masing larutan sebelum dan sesudah degradasi.

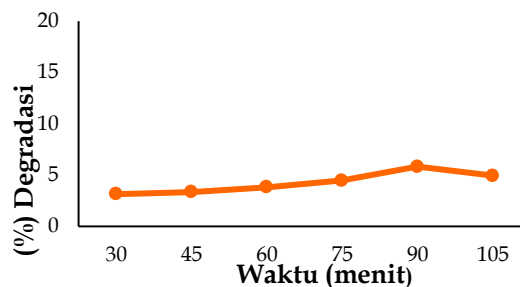


Gambar 3.1. Spektrum serapan *Methyl Orange* pada variasi konsentrasi (a) 2 mg/L, (b) 4 mg/L, (c) 6 mg/L, (d) 8 mg/L, (e) 10 mg/L

Berdasarkan Hukum *Lambert-Beer* nilai absorbansi yang baik berada pada rentang antara 0,2 sampai 0,8. Oleh karena itu untuk memperoleh rentang nilai absorbansi yang sesuai dengan Hukum *Lambert-Beer* digunakan variasi konsentrasi yang berbeda untuk *Methyl Orange* (2, 4, 6, 8, 10, dan 12 mg/L). Berdasarkan kelinearan kurva kalibrasi diperoleh persamaan regresi dari *Methyl Orange*, $y = 0,0719x + 0,0113$ dengan $R^2 = 0,9988$. Penelitian selanjutnya dilakukan degradasi *Methyl Orange* pada konsentrasi 6 mg/L secara fotolisis dengan menggunakan sinar UV A ($\lambda = 365$ nm).

Penentuan Pengaruh Waktu terhadap Persentase Degradasi *Methyl Orange* tanpa katalis

Pada Gambar 3.2 menunjukkan pengaruh waktu penyinaran terhadap persentase degradasi *Methyl Orange* pada proses fotolisis tanpa penambahan katalis ZnO/zeolit. Dari kurva tersebut dapat kita lihat bahwa semakin lama waktu penyinaran mengakibatkan persentase degradasi yang semakin meningkat. Hal ini disebabkan karena semakin lama waktu penyinaran menyebabkan semakin banyak sinar UV yang diserap oleh molekul air dan menghasilkan radikal hidroksil ($\bullet\text{OH}$) yang semakin banyak juga (Ariguna, I. W. S. P., Wiratini, N. M., & Sastrawidana, I. D. K. 2017). Radikal hidroksil memiliki peran penting dalam mendegradasi molekul organik dari zat warna *Methyl Orange* dan karena merupakan oksidator kuat ($E_0 = 2,28 \text{ eV}$) (Yatmaz, H. C., Dizge, N., & Kurt, M. S. 2017). Pada penelitian ini waktu optimum didapatkan untuk *Methyl Orange* adalah 90 menit dengan persen degradasi mencapai 5,83 % (Zilfa, Upita Septiani, Mirawati 2020) ; Zilfa1, Safni1, Febi Rahmi 2021).

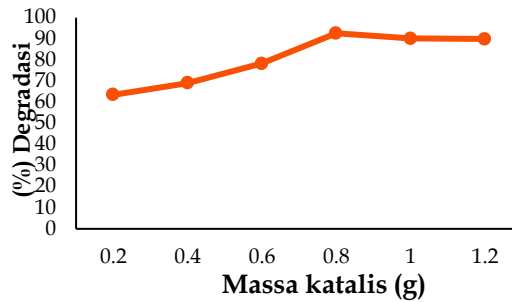


Gambar 3.2 Kurva pengaruh waktu penyinaran 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L terhadap persentase degradasi.

Dari yang didapat ternyata persen degradasi masih sedikit . dengan demikian peneliti ini dilanjutkan dengan penambahan katalis ZnO/zeolit

Penentuan Pengaruh Jumlah Katalis ZnO/zeolit terhadap Persentase Degradasi *Methyl Orange*

Pada Gambar 3.3 menunjukkan hubungan antara massa katalis dengan persentase degradasi, dimana semakin banyak massa katalis ZnO/zeolit yang ditambahkan maka persentase degradasi semakin meningkat. Hal ini disebabkan karena radikal hidroksil yang dihasilkan akan semakin banyak dengan bertambahnya massa katalis ZnO/zeolit (Yatmaz, H. C., Dizge, N., & Kurt, M. S. 2017). Sehingga molekul organik dari zat warna *Methyl Orange* semakin banyak terdegradasi. Pada proses ini terjadi simultan antara degradasi dan adsorpsi, dimana ZnO sebagai pendegradasi dan pembentukan radikal OH sedangkan zeolit sebagai adsorben sehingga mempermudah dan memperbanyak terjadinya degradasi

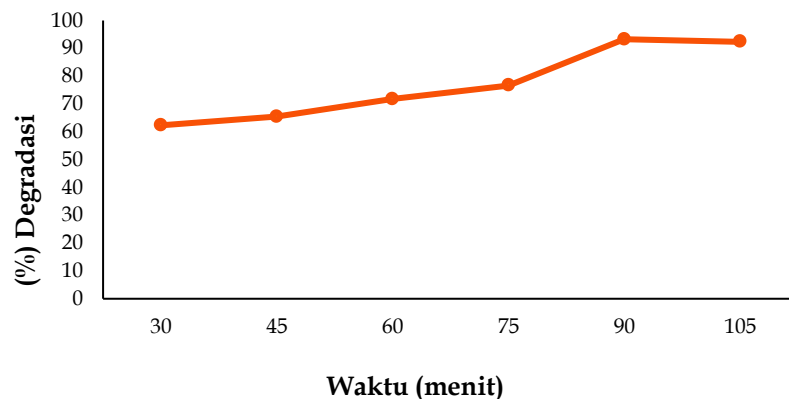


Gambar 3.3 Kurva pengaruh massa ZnO/zeolit terhadap persentase degradasi 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L (waktu irradiasi 90 menit)

Pada penelitian ini massa optimum katalis ZnO/zeolit untuk degradasi *Methyl Orange* adalah 0,8 g dengan persen degradasi mencapai 93,27 % dengan waktu irradiasi 90 menit. Selanjutnya penambahan katalis dengan massa yang lebih besar dari massa optimum tidak mengalami perubahan persen degradasi yang signifikan, ini dikarenakan telah terjadi kejenuhan larutan akibat penambahan jumlah katalis yang lebih banyak yang menyebabkan nilai absorban menjadi naik atau cenderung stabil (Zein *et al.* 2019).

Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Katalis ZnO/zeolit terhadap Persentase Degradasi *Methyl Orange*

Pada Gambar 3.4 menunjukkan terjadinya peningkatan persentase degradasi *Methyl Orange* dengan bertambahnya waktu irradiasi, dimana waktu irradiasi optimum untuk *Methyl Orange* adalah 90 menit dengan persentase degradasi 93,27%. Semakin lama waktu irradiasi maka semakin banyak terbentuk hole yang mengakibatkan banyak pembentukan elektro yang nantinya juga akan memperbanyak terbentuknya radikal OH.



Gambar 3.4 Kurva pengaruh waktu irradiasi setelah penambahan ZnO/zeolit terhadap degradasi 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L (massa ZnO/zeolit 0,8 g)

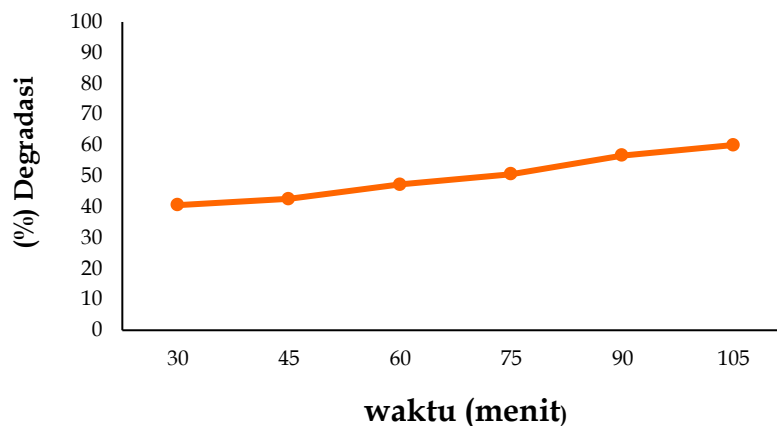
Persentase degradasi yang besar terjadi karena adanya interaksi antara ZnO dan zeolit, dimana saat ZnO terkena cahaya UV terjadi proses transformasi kimia dengan pembentukan radikal hidroksi ($\bullet\text{OH}$), seiring dengan lama waktu penyinaran

mengakibatkan produksi radikal hidroksi ($\bullet\text{OH}$) yang semakin banyak, kemudian dengan adanya zeolit sebagai support katalis membantu memperluas permukaan dari ZnO tersebut sehingga daya adsorbsinya semakin bagus, hal inilah yang menyebabkan *Methyl Orange* terdegradasi secara optimal (Zilfa *et al* 2018 ; Zilfa *et al* 2021 ; Zilfa1, Safni1, Febi Rahmi 2021 ; Zilfa, Hamzar Suyani, Ria Elvi Susanti 2021).

Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Katalis ZnO terhadap Persentase Degradasi *Methyl Orange*

Gambar 3.5 menunjukkan bahwa semakin lama waktu penyinaran persentase degradasi yang dihasilkan semakin meningkat. Pada penelitian ini waktu optimum yang diperoleh untuk degradasi *Methyl Orange* dengan penambahan katalis 0,031 g ZnO adalah 105 menit dengan persentase degradasi 60,09%. Berdasarkan nilai persentase degradasi tersebut dapat dikatakan bahwa pada waktu 105 menit merupakan waktu kontak efektif ZnO terhadap degradasi *Methyl Orange*.

Pada masing-masing waktu optimum tersebut terjadi penyerapan energi foton ($h\nu$) yang paling optimal, sehingga terjadinya proses eksitasi elektron dari pita valensi ke pita konduksi, menyebabkan terbentuknya pasangan Elektron(-) *hole*(+). *Hole*(+) inilah yang akan bereaksi dengan H_2O atau OH^- yang terserap dari larutan sampel yang kemudian menghasilkan radikal hidroksil ($\bullet\text{OH}$) yang akan bereaksi dengan molekul organik dari zat warna *Methyl Orange* menghasilkan senyawa yang lebih sederhana (CO_2 dan H_2O) (Davari, N., Farhadian, M., & Solaimany Nazar, A. R. 2019).



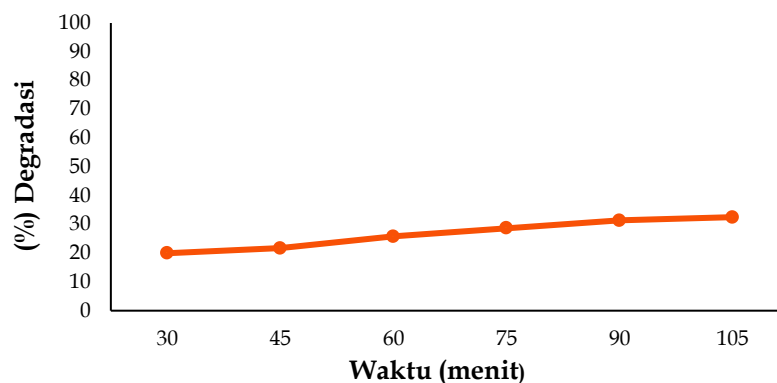
Gambar 3.5 Kurva pengaruh waktu irradiasi setelah penambahan ZnO terhadap degradasi 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L (massa ZnO 0,031 g)

ZnO merupakan katalis yang mempunyai band gap lebih kecil dimana dengan sendirinya menyebabkan mudaknya terjadi eksitasi . dengan demikian akan mudah terbentuknya radikal OH ketika disinari dengan sinar UV. Namun untuk mengoptimalkan kasil degradasi ZnO perlu di support dengan senyawa lain seperti zeolit. Dari hasil degradasi *methyl orange* menggunakan 0,03 g ZnO persen degradasi

mencapai 60,09 % dengan waktu irradiasi 90 menit (Zilfa *et al* 2021 ; Zilfa, Upita Septiani, Mirawati 2020).

Penentuan Pengaruh Waktu Setelah Penambahan Zeolit terhadap Persentase Degradasi *Methyl Orange*

Gambar 3.6 menunjukkan bahwa semakin lama waktu penyinaran persentase degradasi yang dihasilkan semakin besar. Waktu optimum yang peroleh untuk *Methyl Orange* adalah 105 menit dengan persentase degradasi 32,51%. Pada proses fotolisis dengan penambahan katalis zeolit iraradiasi dengan UV tidak mempengaruhi persentase degradasi, karna proses yang terjadi adalah proses absorpsi oleh zeolit terhadap masing-masing zat warna (Zilfa, Safni, Febi Rahmi 2021).

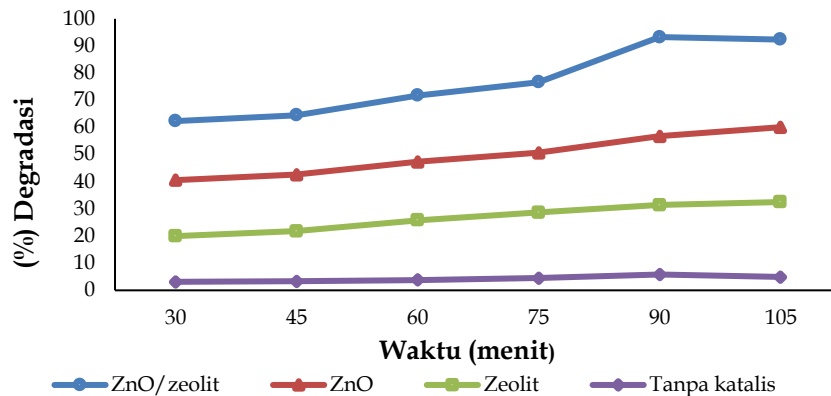


Gambar 3.6 Kurva pengaruh waktu irradiasi setelah penambahan zeolit terhadap degradasi 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L (massa zeolit 0,769 g)

Adapun fungsi dari zeolite pada proses degradasi methyl orange ini adalah untuk memperluas permukaan dari katalis ZnO (Zilfa *et al.* 2018 ; Zilfa *et al* 2021)

Perbandingan Persentase Degradasi *Methyl Orange* tanpa Katalis, Penambahan Katalis ZnO, Zeolit, ZnO/zeolit

Gambar 3.7 menunjukkan bahwa persentase degradasi semakin meningkat dan waktu irradiasi yang dibutuhkan semakin cepat dengan adanya penambahan katalis. Hasil degradasi terjadi secara optimal dengan penambahan katalis ZnO/zeolit, hal ini membuktikan bahwa penambahan zeolit sebagai *support* katalis mampu meningkatkan efisiensi dari proses degradasi.

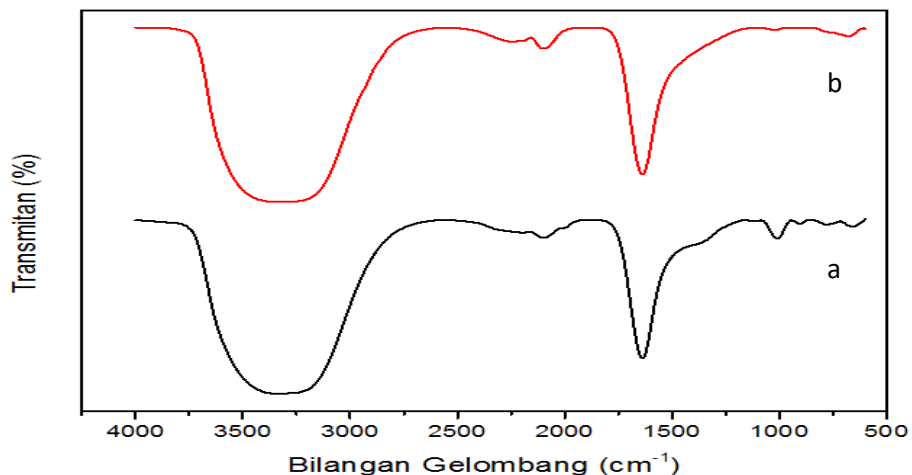


Gambar 3.7 Perbandingan persentase degradasi 20 mL larutan *Methyl Orange* 6 mg/L

Dari Gambar 3.7 dapat dilihat perbandingan tingka persentasi hasil degdradasi antara tanpa katalis yang hanya dipengaruhi sinar UV saja hasil degradasi hanya mencapai 5,83%. Menggunakan katalis ZnO persen degradasi mencapai 60,09% hal ini disebabkan pengaruh kekuatan ZnO dalam menghasilkan radikal OH yang berfungsi sebagai pendegradasi *methyl orange*, sedangkan menggunakan zeolit persen degradasi mencapai 32,51% disini zeolit berfungsi sebagai adsorben, degradsi dilakukan oleh sinar UV. Penggunaan ZnO/zeolit sangat berpengaruh besar terhadap degradasi yang mana persen degradasi mencapai 93,27% , waktu radiasi masing-masing tahap adalah 90 menit. Dengan demikiian ternyata degradasi *methyl orange* secara fotolisis menggunakan katalis ZnO yang disuport oleh zeolit alam jenis clinoptilolit-Ca berpengaruh besar terhadap penanggulangan zat warna *methyl orange* (Zilfa *et al* 2018 ; Zilfa *et al* 2021 ; Zilfa, Upita Septiani, Mirawati 2020).

Analisis Gugus Fungsi *Methyl Orange* sebelum dan setelah Degradasi dengan FT-IR

Methyl Orange sebelum dan setelah degradasi dianalisis dengan menggunakan FT-IR untuk melihat perubahan gugus fungsi dari *methyl orange* tersebut. Pola FT-IR dapat dilihat pada Gambar 3.8

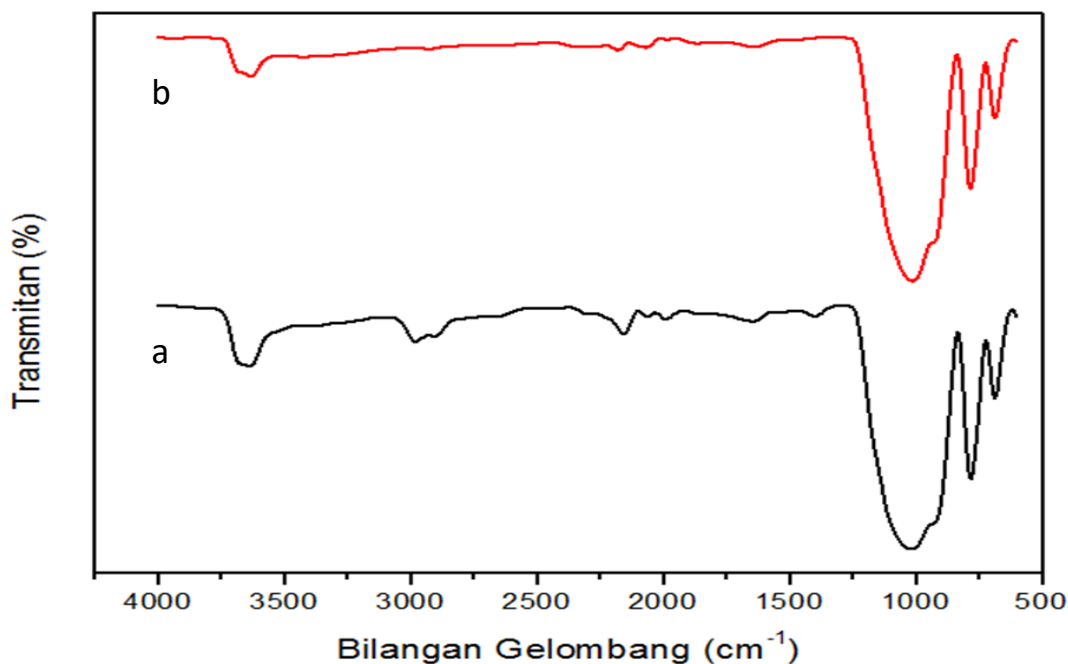


Gambar 3,8 Pola FT-IR *Methyl Orange* (a) sebelum degradasi (b) setelah degradasi

Gambar 3.8 merupakan pola FT-IR dari *Methyl Orange* sebelum dan setelah proses degradasi. Pada gambar terlihat adanya perubahan bilangan gelombang yang menyatakan terjadinya degradasi pada *methyl orange* Pada bilangan gelombang 600-1000 cm^{-1} terjadi perubahan pita yang menandakan bahwa terjadinya pemutusan ikatan C-H aromatik pada *Methyl Orange* dan Pada bilangan gelombang 3333,97 cm^{-1} terdapat puncak lebar yang menunjukkan adanya vibrasi regangan O-H berasal dari molekul H_2O yang digunakan sebagai pelarut Pada bilangan gelombang 1637,72 cm^{-1} muncul puncak yang cukup tajam yang menunjukkan adanya ikatan kuat dari C=C aromatik.

Karakterisasi Katalis ZnO/zeolite sebelum dan setelah Degradasi dengan FT-IR

Katalis ZnO/zeolit sebelum dan setelah degradasi dianalisis dengan menggunakan FT-IR untuk melihat perubahan gugus fungsi dari ZnO/zeolit tersebut. Pola FT-IR dapat dilihat pada Gambar 3.9



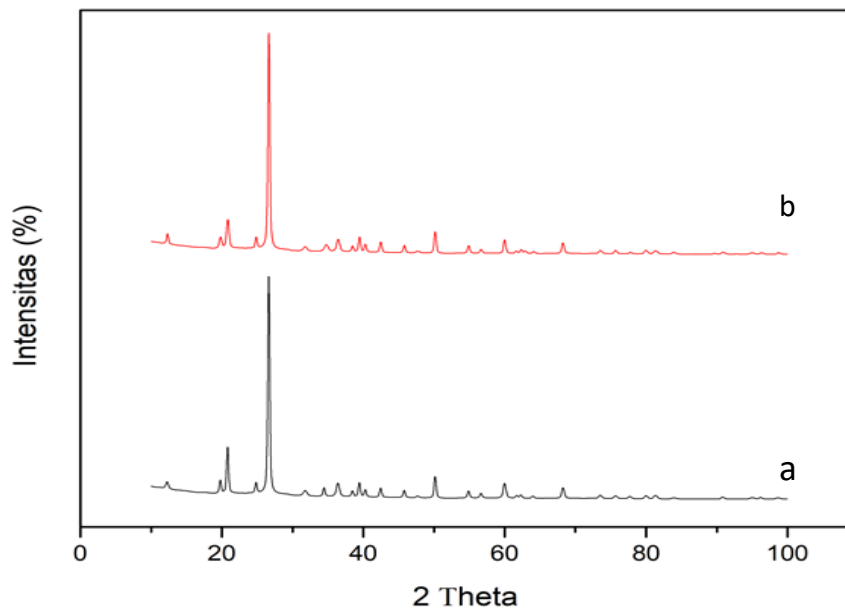
Gambar 3.9 Pola FT-IR dari katalis ZnO/zeolit (a) sebelum degradasi, (b) setelah degradasi.

Gambar 3.9 menunjukkan pola FT-IR dari katalis ZnO/zeolit sebelum dan sesudah degradasi. Dimana terdapat puncak pada bilangan gelombang 780,92 cm^{-1} dan 1016,30 cm^{-1} , bilangan gelombang tersebut mendekati nilai 794,6 cm^{-1} dan 1056,9 cm^{-1} yang menandakan adanya ikatan T-O-T, dimana T merupakan Si atau Al, kemudian pada bilangan gelombang 3629,41 cm^{-1} terdapat puncak lain yang menandakan terjadinya vibrasi regangan O-H, vibrasi ini menandakan telah terjadinya proses dehidrasi akibat pemanasan pada suhu tinggi. Kemudian muncul pita serapan pada bilangan gelombang 1647,88 cm^{-1} merupakan serapan dari ikatan O-H yang berasal dari molekul H_2O . Secara umum pita serapan yang lemah antara 400-600 cm^{-1} dan 463-1700 cm^{-1} menunjukkan

regangan dari ZnO yang telah diamati untuk ZnO dalam berbagai komposit. Pada penelitian ini adanya ZnO ditunjukkan oleh pita serapan pada bilangan gelombang 685,45 cm (Zilfa *et al* 2021 ; Zilfa *et al* 2021)

Karakterisasi Katalis Sebelum dan Sesudah Degradasi dengan XRD

Karakterisasi katalis ZnO/zeolit sebelum digunakan untuk degradasi dan setelah degradasi dilakukan dengan XRD seperti yang ditunjukkan Gambar 3.10



Gambar 3.10 Pola XRD dari katalis ZnO/zeolit (a) sebelum degradasi, (b) setelah degradasi.

Pada gambar diatas dapat dilihat pembentukan katalis ZnO/zeolit yang telah disupport oleh ZnO. Berdasarkan gambar tersebut muncul puncak pada nilai 2 θ yaitu pada 12,3°; 19,8°; 20,8°; 24,8°; 26,6°; dan 31,7° yang menunjukkan puncak spesifik dari zeolit klinoptilolit dimana nilainya sesuai seperti yang ditunjukkan oleh data JCPDS no 39-138361 serta nilai 2 θ tersebut juga memiliki kesamaan dengan nilai 2 θ pada penelitian yang telah dilakukan Nezamzadeh, dkk, 2015. Puncak yang muncul pada nilai 2 θ 36,4°; 39,4°; 42,4°; 47,7°; 50,1°; 57°; 59,9°; 68° menunjukkan bahwa adanya fasa kristal dari ZnO, dimana data tersebut memiliki beberapa titik kesamaan nilai 2 θ untuk ZnO pada range nilai 2 θ 30 dan 40° sesuai dengan data JCPDS dari ZnO (JCPDS 36-1451) 58 serta ZnO biasanya juga muncul pada nilai 2 θ 47°, 57°, 63°, 68°. Hal tersebut menunjukkan bahwa pensupportan zeolit ke dalam ZnO selama proses kalsinasi berhasil dilakukan.

Gambar 4.11 menunjukkan bahwa pola XRD katalis ZnO/zeolit sebelum degradasi dan setelah degradasi menunjukkan pola yang sama, hal tersebut membuktikan bahwa

tidak terjadi perubahan struktur terhadap katalis ZnO/zeolit dalam proses degradasi sehingga dapat disimpulkan bahwa katalis ZnO/zeolit dapat digunakan sebagai katalis dalam degradasi senyawa *methyl orange* (Zilfa *et al* 2021)

Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian diperoleh persentase degradasi Methyl Orange dengan beberapa perlakuan yaitu tanpa katalis, zeolit, ZnO dan ZnO/zeolit . Hasil analisis menunjukkan degradasi tanpa katalis adalah 5,83%, menggunakan zeolit 32,51%, dan menggunakan ZnO 60,09%, selama waktu irradiasi 90 menit. Selanjutnya degradasi menggunakan katalis ZnO/zeolit persentase degradasi Methyl Orange meningkat menjadi 93,27% (massa katalis 0,8 g dan waktu irradiasi 90 menit). Analisis hasil degradasi metil orange menggunakan FTIR didapatkan bahwa terjadi pergeseran bilangan gelombang yang menyatakan terjadinya degradasi.. Karakterisasi katalis ZnO/zeolit menggunakan FTIR dan XRD tidak terjadi perubahan struktur dari ZnO/zeolit yang berarti bahwa ZnO/zeolit dapat digunakan sebagai katalis dalam degradasi metil orange. Berdasarkan data tersebut dapat dikatakan bahwa katalis ZnO/zeolit berhasil meningkatkan persentase degradasi *Methyl Orange* dibandingkan menggunakan katalis ZnO saja dan zeolit saja.

Daftar Pustaka

- Amornpitoksuk, P., Suwanboon, S., & Randorn, C. (2018). Photocatalytic activities of silver compound modified activated carbon ZnO: Novel ternary composite visible light-driven photocatalysts. *Materials Science in Semiconductor Processing*. Vol. 84: 50-57.
- Ariguna, I. W. S. P., Wiratini, N. M., & Sastrawidana, I. D. K. (2017). Degradasi Zat Warna Remazol Yellow FG dan Limbah Tekstil Buatan dengan Teknik Elektrooksidasi. *Jurnal Pendidikan Kimia Undiksha*. Vol. 1(1).
- Bhernama, B. G., Safni, S., & Syukri, S. (2015). Degradasi Zat Warna Metanil Yellow Secara Fotolisis Dan Penyinaran Matahari Dengan Penambahan Katalis TiO₂-anatase dan SnO₂. *Elkawnie*. Vol. 1(1): 49-62.
- Davari, N., Farhadian, M., & Solaimany Nazar, A. R. (2019). Synthesis and characterization of Fe₂O₃ doped ZnO supported on clinoptilolite for photocatalytic degradation of metronidazole. *Environmental technology*. 1-13.
- Fitriyani, Y. O., Septiani, U., Wellia, D. V., Putri, R. A., & Safni, S. (2017). Degradasi Zat Warna Direct Red-23 Secara Fotolisis dengan Katalis CN-codoped TiO₂. *Jurnal Kimia Valensi*.

- Naimah, S., Jati, B. N., Aidha, N. N., & Cahyaningtyas, A. A. (2014). Degradasi Zat Warna Pada Limbah Cair Industri Tekstil Dengan Metode Fotokatalitik Menggunakan Nanokomposit Tio₂-Zeolit. *Jurnal Kimia dan Kemasan*. Vol. 36(2): 225-236.
- Yatmaz, H. C., Dizge, N., & Kurt, M. S. (2017). Combination of photocatalytic and membrane distillation hybrid processes for reactive dyes treatment. *Environmental technology*. Vol. 38(21): 2743-2751.
- Zilfa, Rahmayeni, Stiadi, Y. Adril (2018). Utilization of Natural Zeolit Clipnotilolite-Ca as a Support of ZnO Catalyst for Congo-Red Degradation and Congo-Red Waste Applications with Photolysis. *Oriental Journal of Chemistry*. Vol. 34(2): 887-893.
- Zilfa, B. Arifin, R. Zeinc, Rahmayeni, S. Ummia, S. Ramadhana (2021). Effectiveness and efficiency between CuO/natural zeolite catalysts and ZnO/natural zeolite in naphthol blue-black waste management by photolysis degradation method Desalination and Water Treatment 226 400-407
- Zilfa, Rahmayeni, B. Arifin, V. Sisca, and E.S. Putri (2021). Photolysis Of Naphthol Blue-Black From Kubang Weaving Waste Using Tio₂/Zeolite as a Catalyst *Rasayan Journal Chemistry* Vol. 14 | No. 2 |1247-1254
- Zilfa, Upita Septiani, Mirawati (2020). Pengaruh HCl terhadap Aktifasi Zeolit Alam Clipnotilolit-Ca pada Penyerapan Pb(II) *Jurnal Riset Kimia* Vol. 11, No. 2
- Zilfa, Safni, Febi Rahmi (2021). Penggunaan ZnO/zeolit sebagai katalis dalam degradasi tartrazin secara ozonolisis, *Jurnal Riset Kimia*, Vol. 12, No. 1.
- Zilfa, Hamzar Suyani, Ria Elvi Susanti (2021). Degradation of Congo Red Color Substance in Ozonolysis with addition of ZnO/zeolite as Catalyst *Jurnal Katalisator* Vol 6 No. 1 13-20
- Zein, R., Ramadhani, P., Aziz, H., & Suhaili, R. (2019). Biosorben Cangkang Pensi (Corbicula Moltkiana) sebagai Penyerap Zat Warna Metanil Yellow Ditinjau dari pH dan Model Keseimbangan Adsorpsi. *Jurnal Litbang Industri*. Vol. 9(1):15-22.