

**PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI KATALIS ZnO/KARBON AKTIF
DENGAN METODE *SOLID STATE* DAN UJI AKTIFITAS KATALITIKNYA
PADA DEGRADASI RHODAMIN B**

Upita Septiani*, Iona Bella, dan Syukri

Laboratorium Kimia Material, Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Andalas
Kampus Limau Manis Padang-25163, Indonesia
e-mail: upitas@yahoo.com

ABSTRACT

Composite catalyst ZnO/Activated Carbon (ZnO/AC) had been synthesized successfully by solid state method. Synthesis was done by varying the addition of activated carbon (AC) 2%, 5%, and 10% ZnO mass. Composite catalyst were calcinated at 400°C and characterized by FTIR (*Fourier Transform Infra Red*), XRD (*X-Ray Diffraction*), SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Based on the results of FTIR, absorption appeared in the region wave number 1400-1600 cm⁻¹, which indicated stretching of C=C was assumed come from AC. From the XRD results, it was known by the addition of AC, not overly change the crystallinity and crystal size of ZnO, the crystal structure is hexagonal (wurtzite). SEM images showed AC prevented the agglomeration of ZnO that would expand the surface area of ZnO and increased catalytic activity of ZnO. For the results of the catalytic activity test, catalyst ZnO/AC was tested on the degradation of Rhodamine B solution (10 ppm) by UV light irradiation, where the increasing number of trains the catalytic ability of ZnO also increased, it could be concluded that activated carbon can support to increase the role of ZnO in degrading Rhodamine B.

Keywords: *composite catalyst, ZnO, activated carbon, solid state, Rhodamine B*

PENDAHULUAN

Belakangan ini semikonduktor berbasis reaksi fotokatalitik telah banyak menarik perhatian. Diantara berbagai macam semikonduktor, ZnO merupakan salah satu semikonduktor anorganik yang tidak bersifat toksik yang dapat memberikan mobilitas tinggi dan stabilitas termal yang baik. ZnO memiliki jarak pita 3,37 eV dengan energi ikatan 60 meV pada suhu ruang dengan struktur yang stabil yaitu wurtzite^[1]. Banyak penelitian yang dilakukan dengan menggunakan ZnO sebagai katalis, baik ZnO sebagai monokatalis, ZnO yang didoping dengan sesama logam (metal-metal) maupun yang didoping dengan senyawa non logam

(metal-non metal) karena sifatnya yang serbaguna, kemudahan dalam pembuatan, dan biaya yang relatif murah^[2,3,4].

Karbon aktif adalah suatu bahan hasil proses pirolisis arang pada suhu 600-900°C. Bentuk dominannya adalah karbon amorf yang memiliki luas permukaan yang luar biasa besar dan volume pori. Karakteristik unik ini terkait dengan sifat daya serapnya, yang dimanfaatkan dalam berbagai aplikasi fase cair maupun fase gas. Karbon aktif adalah adsorben yang sangat serbaguna karena ukuran dan distribusi pori-pori di dalam matriks karbon dapat dikontrol untuk memenuhi kebutuhan pasar saat ini^[5].

Adapun salah satu aplikasinya adalah sebagai adsorben yang sering digunakan pada industri tekstil untuk menghilangkan warna dan mempunyai efektifitas tinggi untuk menyerap berbagai tipe zat warna^[6].

Beberapa keuntungan yang diharapkan dari penyesuaian ZnO pada karbon aktif diantaranya karbon aktif merupakan kandidat yang cocok untuk adsorben sebagai pendukung dalam proses adsorpsi-katalitik karena dengan adanya karbon aktif dapat meningkatkan *microporosity* dan luas permukaan yang tinggi, sehingga memiliki daya adsorpsi yang baik.^[7] Material ZnO yang dimodifikasi dengan penambahan karbon aktif menjadi sebuah material komposit yang memiliki fungsi ganda yaitu sebagai adsorben dari sifat karbon aktif yang berpori serta sebagai fotokatalis yang berasal dari ZnO. Dalam beberapa penelitian sebelumnya juga telah dilakukan pembuatan katalis ZnO yang *disupport* karbon aktif yaitu dengan beberapa metode seperti mikro emulsi, proses solvotermal dengan etanol^[7,8].

Pada penelitian ini, sintesis katalis ZnO/karbon aktif dilakukan dengan menggunakan metode *solid state*. Katalis yang terbentuk dikarakterisasi dengan FTIR (*Fourier Transform Infra Red*), XRD (*X-Ray Diffraction*), SEM (*Scanning Electron Microscopy*) yaitu untuk melihat bagaimana katalis yang terbentuk, serta uji aktifitas fotokatalitiknya dalam mendegradasi Rhodamin B.

METODOLOGI PENELITIAN

Bahan Kimia, Peralatan dan Instrumentasi

Bahan-bahan yang digunakan adalah seng oksida (ZnO) (Merck), karbon aktif (Merck), Rhodamin B, dan akuades.

Peralatan yang digunakan antara lain beberapa peralatan gelas, neraca analitis, *hot plate & magnetic stirrer*, oven, *furnace*, corong Buchner, cawan petri (d= 13,5 cm), lampu merkuri ($\lambda= 365$ nm), sentrifus, nano *milling*. Instrumen yang digunakan adalah Fourier Transform Infra Red (FTIR; JASCO FT-IR 460 plus), XRay Diffraction (XRD;

Philip X'Pert Powder Type PW4030/60), Scanning Electron Microscopy (SEM; Phenom Pro X), serta Spektrofotometer UV-Vis.

Prosedur Penelitian

Preparasi sampel ZnO

Sejumlah ZnO dihaluskan dengan menggunakan nanomiling selama ± 1 jam, kemudian diaktifasi pada suhu 200°C selama 5 jam. Pada saat diaktifasi ZnO diaduk dengan menggunakan *magnetic stirrer* dan dibantu pengadukan secara manual dengan menggunakan batang pengaduk.

Sintesis katalis ZnO/karbon aktif (ZnO/KA)

Sebanyak 4 g ZnO yang telah diaktifasi, dicampurkan dengan 160 mL akuades untuk menghasilkan campuran ZnO. Kemudian ditambahkan karbon aktif ke dalam campuran ZnO yang telah dibuat dengan perbandingan 2%, 5%, dan 10% karbon aktif terhadap massa ZnO yaitu 0,08 g; 0,2 g; dan 0,4 g. Larutan ZnO/KA yang telah divariasikan selanjutnya dimasukkan ke dalam labu alas bulat 500 mL, labu dirangkai ke alat refluks dengan pendingin air dan dipanaskan pada temperatur 90°C selama 5 jam sambil diaduk menggunakan *magnetic stirrer*, kemudian disaring dengan penyaring Buchner. Penguapan pelarut disempurnakan dengan pengeringan menggunakan oven listrik pada temperatur 120°C hingga berat konstan. Katalis kering digerus dalam cawan porselin kemudian dikalsinasi pada temperatur 400°C selama 6 jam. Katalis yang telah terbentuk kemudian dikarakterisasi dengan FTIR, XRD, dan SEM^[9].

Uji aktifitas fotokatalitik katalis ZnO/Karbon aktif (ZnO/KA)

Aktifitas fotokatalitik katalis ZnO/KA diuji terhadap degradasi Rhodamin B. Sebanyak 0,01 g Rhodamin B ditimbang, kemudian dilarutkan dengan akuades dalam labu 1000 mL, didapatkan konsentrasi larutan Rhodamin B 10 ppm, selanjutnya diukur serapan serta absorban maksimumnya dengan spektrofotometer UV-Vis. Larutan tersebut diambil 20 mL dan ditambahkan 0,02 g katalis ZnO/KA yang telah disintesis. Campuran tersebut kemudian disinari di bawah sinar UV dengan variasi lama waktu

penyinaran 1, 2, dan 3 jam. Untuk koreksi pengurangan massa larutan akibat penguapan oleh panas yang timbul selama penyinaran dilakukan dengan menambahkan sejumlah akuades sesuai massa air yang hilang selama penyinaran. Setelah itu campuran disentrifus, serapan filtrat diukur dengan menggunakan Spektrofotometer UV-VIS. Cara yang sama juga dilakukan sebagai kontrol yaitu dengan menggunakan katalis ZnO, serta tanpa menggunakan katalis^[10].

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi Dengan FTIR

Gambar 1.a merupakan spektrum FTIR ZnO murni. Spektrum ini memperlihatkan adanya pita serapan pada bilangan gelombang 420 cm^{-1} yang menandakan adanya vibrasi ulur dari Zn-O. Munculnya pita serapan pada bilangan gelombang $1250\text{-}1750\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi Zn-O-Zn. Selanjutnya pada daerah 3436 cm^{-1} dan 1637 cm^{-1} merupakan vibrasi O-H *stretching* dan vibrasi O-H *bending* dari molekul air yang terserap pada permukaan ZnO.

Gambar 1.b merupakan spektrum FTIR karbon aktif, Dari spektrum memperlihatkan adanya pita serapan pada bilangan gelombang 3443 cm^{-1} yang menunjukkan adanya gugus hidroksil (-OH) pada karbon aktif, munculnya pita serapan pada daerah ini juga menunjukkan adanya adsorbansi gugus -CH yang tumpang tindih dengan adsorbansi -OH pada daerah tersebut. Kemudian terdapat serapan pada daerah antara $1400\text{-}1600\text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan adanya *stretching* C=C dari karbon aktif, serapan pada 1384 cm^{-1} dan 1138 cm^{-1} menunjukkan adanya *stretching* C-O dan *stretching* C-O-C, dan tidak adanya pita-pita serapan pada daerah sidik jari kisaran bilangan gelombang $700\text{ - }800\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan bahwa karbon aktif bukan merupakan senyawa yang mengandung rantai alkil yang panjang^[6,11].

Gambar 1.c, d, dan e merupakan spektrum FTIR dari katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% (%wt).



Gambar 1. Spektrum FTIR dari a.ZnO b.Karbon Aktif c.ZnO/KA 2% d.ZnO/KA 5% e.ZnO/KA 10%.

Memperlihatkan pola yang sama atau senada, dimana dengan penambahan karbon aktif 2%, 5%, dan 10% ternyata tidak terlalu memberikan perubahan yang signifikan pada spektrum ZnO, yaitu serapan pada daerah $400\text{-}450\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi ulur dari Zn-O, daerah $3400\text{-}an\text{ cm}^{-1}$ merupakan *stretching* O-H dari molekul air yang terserap pada permukaan ZnO. Kemudian adanya serapan pada daerah $1600\text{-}1680\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya *stretching* C=C yang diasumsikan berasal dari karbon aktif, namun puncak serapan ini masih cukup lemah. Hal ini dimungkinkan karena jumlah karbon aktif yang digunakan cukup sedikit^[6, 11].

Karakterisasi Dengan XRD

Gambar 2.a merupakan pola difraksi sinar-X ZnO yang menunjukkan bahwa ZnO adalah kristal dengan memberikan intensitas yang dominan yaitu pada nilai 2θ $31,75$; $34,40$; dan $36,22$. Dengan membandingkan data dari ICDS No. 01-073-8765, puncak-puncak ZnO yang diukur menunjukkan kemiripan dengan puncak-puncak ZnO pada ICDS tersebut, ini

mengindikasikan bahwa ZnO merupakan kristal yang memiliki struktur wurtzite (heksagonal), dengan ukuran kristal yang didapat dari perhitungan yaitu 54,481 nm.

Gambar 2.b merupakan pola difraksi sinar-X karbon aktif. Dari gambar dapat dilihat bahwa karbon aktif bukan merupakan kristal tetapi amorf karena pola XRD karbon aktif tersebut tidak menunjukkan adanya puncak-puncak yang spesifik.

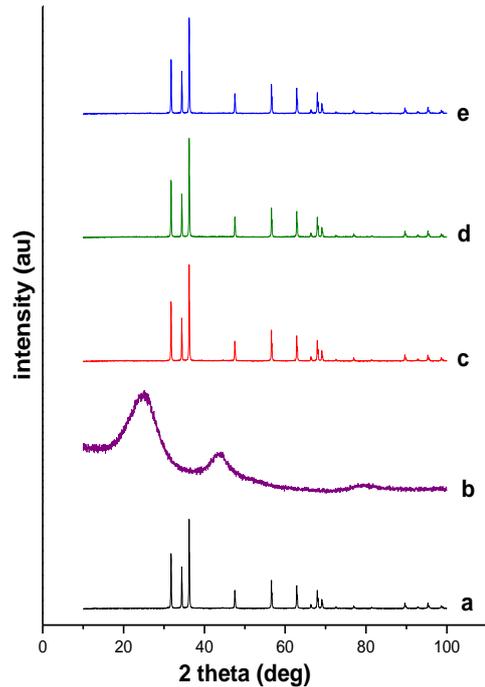
Gambar 2.c, d, dan e merupakan pola difraksi sinar X katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% (%wt) memperlihatkan pola yang senada, ternyata dengan adanya penambahan karbon aktif 2%, 5%, dan 10% tidak terlalu berpengaruh pada pola difraksi ZnO, dan hanya sedikit merubah nilai intensitas dari masing-masing puncak yang ada. Pola difraksi sinar-X, juga dapat memberikan informasi mengenai ukuran kristal sampel. Dengan menggunakan persamaan Scherrer, didapatkan ukuran kristal dari ZnO, ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% berturut-turut adalah 54,481; 54,481; 54,482; dan 54,482 nm. Jadi dapat disimpulkan bahwa penambahan karbon aktif, pada dasarnya tidak terlalu merubah ukuran kristal ZnO

Karakterisasi Dengan SEM

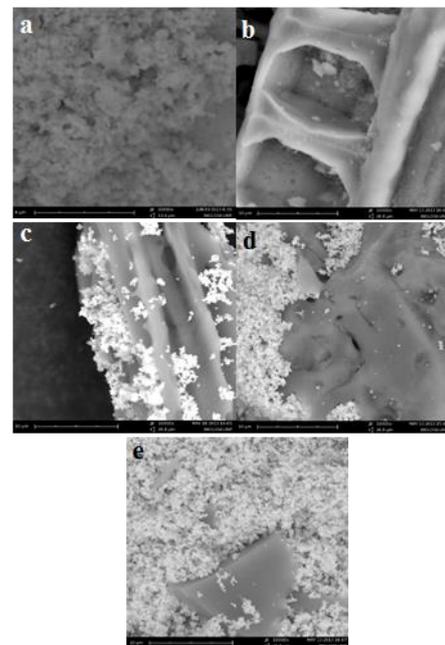
Gambar 3.a merupakan hasil SEM ZnO dengan perbesaran 20000x, dapat diketahui dari gambar bahwa partikel-partikel ZnO menumpuk antar sesama partikelnya yang terlihat seperti gumpalan-gumpalan.

Untuk gambar 3.b merupakan hasil SEM dari karbon aktif, yang memperlihatkan bahwa karbon aktif berbentuk batangan dan memiliki pori, pori ini yang nantinya akan membantu kerja katalitik dari ZnO. Gambar 3.c, d, dan e merupakan hasil SEM dari katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% (%wt), dari hasil yang ada dapat dilihat bahwa dengan bertambahnya jumlah karbon aktif dalam ZnO, partikel-partikel ZnO menempel dan menyebar ke permukaan karbon aktif. Karbon aktif menghalangi terjadinya penumpukan pada sesama partikel ZnO. Terhalangnya penumpukan partikel ZnO ini diasumsikan akan menyebabkan luas permukaan partikel ZnO semakin besar, yang

nantinya akan meningkatkan aktifitas fotokatalitik ZnO.



Gambar 2. Pola XRD dari a. ZnO, b. Karbon Aktif, c. ZnO/KA 2%, d. ZnO/KA 5%, and e. ZnO/KA 10%.



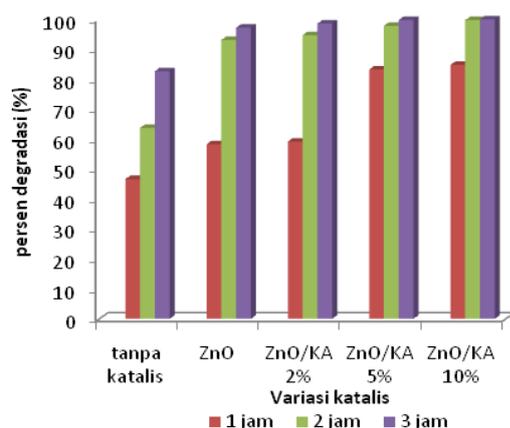
Gambar 3. Foto SEM dari a. ZnO 20000x, b. Karbon aktif, c. ZnO/KA 2%, d. ZnO/KA 5%, e. ZnO/KA 10% 10000x.

Uji Aktifitas Fotokatalitik Katalis ZnO, Karbon Aktif, dan Katalis ZnO/KA

Uji aktifitas katalis ZnO, karbon aktif, dan katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% (% wt), dan tanpa katalis dilakukan pada degradasi larutan Rhodamin B 10 ppm serta penyinaran menggunakan lampu UV ($\lambda = 365$ nm) pada variasi lama penyinaran 1, 2, dan 3 jam. Hasil uji aktifitas fotokatalitik yang telah dilakukan, diperlihatkan pada diagram Gambar 4.

Berdasarkan Gambar 4, dari data hasil pengukuran menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 551 nm, untuk semua variabel x baik tanpa katalis, dengan katalis ZnO, dan katalis komposit ZnO/KA dengan berbagai variasi, yang memperlihatkan bahwa dengan semakin meningkatnya lama penyinaran maka persentase degradasi Rhodamin B semakin meningkat. Untuk tanpa katalis, peningkatan persen degradasi dikarenakan semakin lamanya waktu kontak antara larutan Rhodamin B dengan sinar UV.

Selanjutnya dengan penambahan katalis ZnO, persen degradasi Rhodamin B meningkat dibandingkan dengan menggunakan penyinaran saja (tanpa katalis), hal ini dikarenakan telah adanya peranan ZnO sebagai fotokatalis yang aktif pada daerah sinar UV, sehingga akan menunjukkan kerja katalitiknya pada degradasi Rhodamin B.



Gambar 4. Diagram persentase degradasi larutan Rhodamin B 10 ppm tanpa menggunakan katalis, katalis ZnO, katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%; 5%; dan 10%.

Hal yang sama juga diperlihatkan pada penambahan komposit katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%, 5%, dan 10% (% wt), yaitu persen degradasi Rhodamin B meningkat untuk setiap variasi lama penyinarannya. Semakin meningkatnya kadar karbon aktif maka kemampuan katalitik katalis ZnO/KA dengan berbagai variasi juga meningkat, hal ini dikarenakan karbon aktif menghalangi terjadinya penggumpalan antar sesama partikel ZnO yang diasumsikan dapat memperbesar luas permukaan spesifik, sehingga akan meningkatkan aktifitas fotokatalitik ZnO.

Pada penyinaran selama 3 jam, katalis ZnO/KA 10% yang diujikan memberikan persen degradasi tertinggi yaitu 100%. Ini menandakan bahwa larutan Rhodamin B 10 ppm telah terdegradasi sempurna, ditunjukkan pula dengan telah terjadinya perubahan warna yang awalnya merah muda pekat berubah menjadi bening. Ini membuktikan bahwa katalis ZnO/KA dengan variasi KA 10% memberikan aktifitas paling baik dibandingkan katalis ZnO, katalis ZnO/KA dengan variasi KA 2%; 5%, dan tanpa katalis. Jadi dapat disimpulkan bahwa karbon aktif dapat meningkatkan peranan ZnO dalam mendegradasi senyawa Rhodamin B.

KESIMPULAN

Katalis ZnO/karbon aktif telah berhasil disintesis dengan metode *solid state*, dibuktikan dengan adanya data FTIR, XRD, dan SEM. Dari hasil FTIR, menunjukkan adanya serapan stretching C=C yang diasumsikan berasal dari karbon aktif. Kemudian hasil XRD menunjukkan dengan adanya penambahan karbon aktif ternyata tidak terlalu merubah kristalinitas dan ukuran kristal dari ZnO. Hasil yang ditunjukkan oleh data SEM memperlihatkan bahwa dengan adanya karbon aktif dapat menghalangi terjadinya penumpukan antar sesama partikel ZnO, dimana partikel ZnO menempel dan menyebar ke permukaan karbon aktif. Hasil uji aktifitas katalitik katalis ZnO/KA dengan berbagai variasi, didapatkan semakin meningkatnya jumlah karbon aktif maka kemampuan katalitik ZnO juga meningkat,

dapat disimpulkan bahwa karbon aktif membantu meningkatkan peranan ZnO dalam mendegradasi Rhodamin B.

DAFTAR PUSTAKA

1. Z. Han, L. Liao, Y. Wu, H. Pan, S. Shen, and J. Chen, Synthesis and Photocatalytic Application of Oriented Hierarchical ZnO Flower-rod Architectures, *J. of Hazardous Materials*, 100-106, (2010).
2. S.. Chakrabarti and B. K. Dutta, Photocatalytic degradation of model textile dyes in wastewater using ZnO as semiconductor catalyst, *J. of Hazardous Materials*, 269-278, (2004).
3. J. W. Andreasen, F. B. Rasmussen, S. Helveg, A. Molenbroek, K. Ståhl, M. M. Nielsend, and R. Feidenhans'la, Activation of a Cu/ZnO catalyst for methanol synthesis, *J. Appl. Cryst.* **39**, 209-221, (2006).
4. S. Lian, H. Huang, J. Zhang, Z. Kang, and Y. Liu, One-step Solvothermal Synthesis of ZnO-Carbon Composite Spheres Containing Different Ammounts of Carbon and Their Use as Visible Light Photocatalysts, *J. Solid State Communication*, 11, 003, (2012).
5. Amelia, Rizki., Pandapotan, Harlanto., dan Purwanto, Pembuatan dan Karakterisasi Katalis Karbon Aktif Tersulfonasi sebagai Katalis Ramah Lingkungan pada Proses Hidrolisis Biomassa, *J. Teknologi Kimia dan Industri*, (2013).
6. E. Vourdrias, K. Fytianos, dan E. Bozani, Sorption-Desorption Isotherm of Dyes from Aqueous Solution and Waste Water with Different Sorbent Materials, *J. Global Nest*, 4, 1, (2002)
7. C. Jing, W. Xinlan, S. Xiaobao, and P. Rongkan, Synthesis of Zinc Oxide/ Activated Carbon Nano-Composites and Photodegradation of Rhodamine B, *J. Environmental Engineering Sci.*, 29, 6, 393-399, (2012).
8. S. Lian, H. Huang, J. Zhang, Z. Kang, and Y. Liu, One-step Solvothermal Synthesis of ZnO-Carbon Composite Spheres Containing Different Ammounts of Carbon and Their Use as Visible Light Photocatalysts, *J. Solid State Communication*, 11, 003, (2012).
9. W. Trisunaryanti, Handirofa, Triyono, dan S. Purwono, Preparasi, Karakterisasi dan Uji Aktifitas Katalis CoMo/ZnO pada Konversi Etanol Menggunakan Metode Steam Reforming, *J. Indo Chem*, 9, 2, 195-200, (2009).
10. S. Darajat, H. Aziz, A. Alif, Seng Oksida (ZnO) sebagai Fotokatalis pada Proses Degradasi Senyawa Biru Metilen, *Jurnal Riset Kimia*, 1, 2, hal. 179-186, (2008).
11. Stuart and Barbara., *Infrared Spectroscopy Fundamental*, Jhon Willey & Sons Ltd, ISBNs: 0-470-85427-8 (HB); 0-470-85428-6 (PB), (2004).