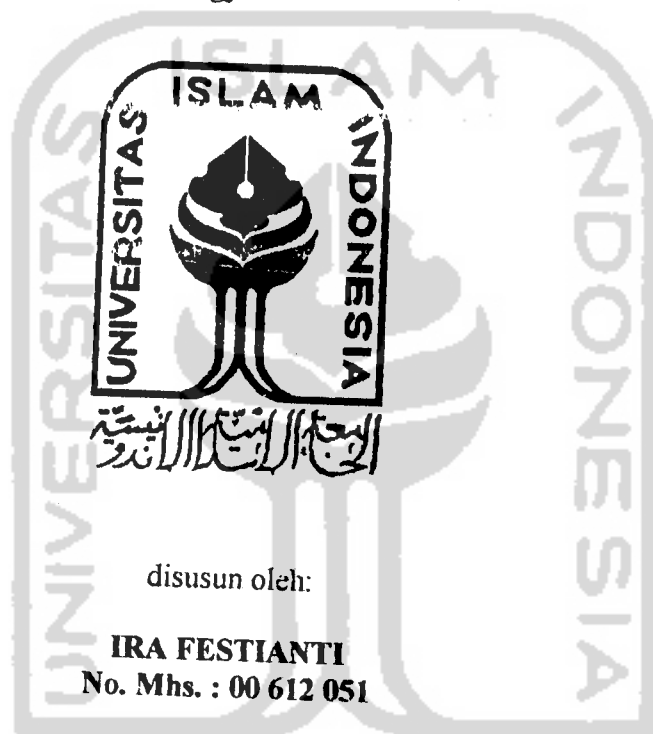


**FOTODEGRADASI CONGO RED
DENGAN KATALIS TiO_2 MONTMORILLONIT**

SKRIPSI

**Diajukan untuk memenuhi salahsatu syarat mencapai
gelar Sarjana Sains (S.Si) Program Studi Kimia
pada Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Islam Indonesia
Jogjakarta**



disusun oleh:

IRA FESTIANTI
No. Mhs. : 00 612 051

**JURUSAN ILMU KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS ISLAM INDONESIA
JOGJAKARTA
2005**

**FOTODEGRADASI CONGO RED
DENGAN KATALIS TiO₂ MONTMORILLONIT**

Oleh:

**Ira Festianti
No Mhs :00612051**

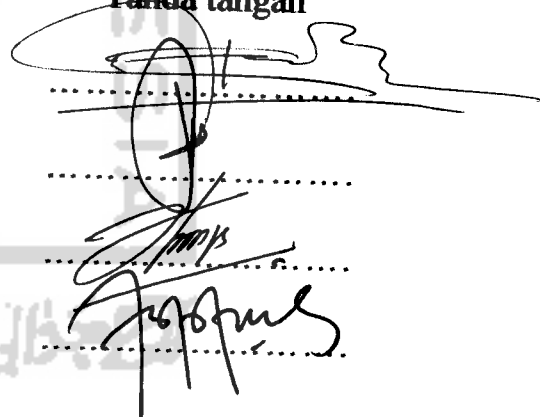
Telah dipertahankan di hadapan panitia penguji skripsi
Jurusan Ilmu Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Islam Indonesia

Tanggal: 26 Februari 2005

Dewan Penguji

1. Drs. Allwar, M.Sc.
2. Rudy Syahputra, M.Si
3. Dr.rer.nat. Karna Wijaya, M.Eng.
4. Is Fatimah, M.Si.

Tanda tangan

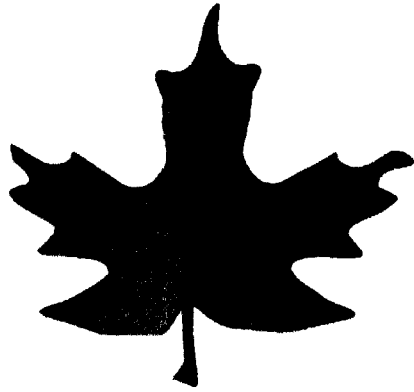


Handwritten signatures of the examiners, including Drs. Allwar, Rudy Syahputra, Karna Wijaya, and Is Fatimah, positioned to the right of their respective names.

Mengetahui,
Dekan Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Islam Indonesia



(Jaka Nugraha, M.Si.)



"Dan janganlah kamu sekali-kali mengatakan terhadap sesuatu, 'Pesungguhnya aku akan mengerjakannya esok pagi, kecuali mengucapkan 'Insya Allah'" (Q.S. 18: 23-24)

"Dia telah memberimu pendengaran, penglihatan, dan hati, agar kamu bersyukur." (Q.S. 16: 78)

"Wahai orang-orang beriman! Jadikanlah sabar dan shalat sebagai penolongmu, sesungguhnya Allah beserta orang-orang yang sabar" (Q.S. 2: 153)

"Apa gunanya hidup lama namun tak berbuat banyak, hingga dilupakan. Akan lebih baik jika hidup singkat namun berkeadilan, hingga dunia akan mengingat kita; dalam sepuluh, seratus bahkan seribu tahun kedepan" (Miyamoto Musashi: Pamurai)

"Orang yang pandai adalah: memahami musuh lebih dari memahami diri sendiri. Niscaya 1000 pertempuranpun akan dimenangkan." (Sun Tzu: Ahli perang China)

Banyak-banyak terima kasih untuk :

- *Syukur untuk Allah Subhanahu Wata'ala, yang telah mengizinkan aku untuk jadi bagian dari ciptaan-Nya.*
- *Dosen-dosen yang telah banyak membimbing dan melimpahkan ilmu pengelahuan yang mereka miliki, sehingga Insya Allah aku menjadi orang yang tidak bodoh lagi.*
- *Pesorang yang sudah melimpahkan 'kasih dan sayangnya'.... maafkan kalau selama ini telah banyak merepotkan, dan terima kasih untuk semangat serta dukungannya, khususnya dalam penyelesaian skripsi ini. (long hilap kana janji.!)*
- *Teman-teman sala kost (Vita, Rina, Feli, Mala dan Alfi). Terima kasih atas kebersamaan dan keikhlasannya... hanya kalian saudara yang aku punya di kota Jogja ini.*
- *Lina dan Esti. Banyak sekali suka dan duka yang sudah kita alami selama penelitian, semoga kelak menjadi kenangan dan pengalaman yang tak ternilai.*
- *Teman-teman seperjuangan (Kimia angkatan 2000). Terima kasih bantuan dan do'anya.*
- *Teman-teman yang tidak dapat disebutkan sala-persala. Terima kasih untuk semuanya.*

FOTODEGRADASI CONGO RED DENGAN KATALIS TiO₂ MONTMORILLONIT

INTISARI

Ira Festianti
NIM 00 612 051

Telah dilakukan penelitian mengenai sintesis TiO₂ montmorillonit dan aplikasinya sebagai katalis untuk mendegradasi *congo red*.

Montmorillonit terpillar TiO₂ disintesis dari Montmorillonit alam dengan agen pemilar Ti. TiO₂ Montmorillonit yang terbentuk digunakan untuk mendegradasi senyawa pencemar *congo red*. Karakterisasi terhadap Montmorillonit terpillar dilakukan dengan metode XRD, *gas sorption analysis* dan analisis pengaktifan neutron. Analisis pengurangan *congo red* akibat fotodegradasi dilakukan dengan spektroskopi ultra violet.

Hasil XRD pada Montmorillonit terpillar menunjukkan peningkatan *basal spacing* (*d*₀₀₁) sebesar 6,46 Å. analisis APN menunjukkan luas permukaan spesifik dari Montmorillonit terpillar sebesar 208,12 m²/g. volume total pori setelah terpillar juga menunjukkan peningkatan sebesar 167,87 x 10⁻³ mL/g. penentuan kandungan Ti dalam Montmorillonit tertinggi diperoleh pada Montmorillonit terpillar sebesar 26,87 % (b/b) yang menunjukkan bahwa pemiliran dengan TiO₂ telah berhasil. Analisis dengan spektroskopi UV menunjukkan terjadinya penurunan konsentrasi *congo red* setelah dikatalis dengan TiO₂ Montmorillonit dan disinari dengan sinar UV yang menunjukkan bahwa degradasi *congo red* sudah terjadi. Kajian kinetika reaksi degradasi *congo red* diketahui berjalan mengikuti orde 1 dengan konstanta laju reaksi sebesar 0,00609 menit⁻¹.

Kata kunci: fotodegradasi, *congo red*, TiO₂ Montmorillonit, spektroskopi UV.

PHOTODEGRADATION OF CONGO RED USING TiO₂-MONTMORILLONITE CATALYST

ABSTRACT

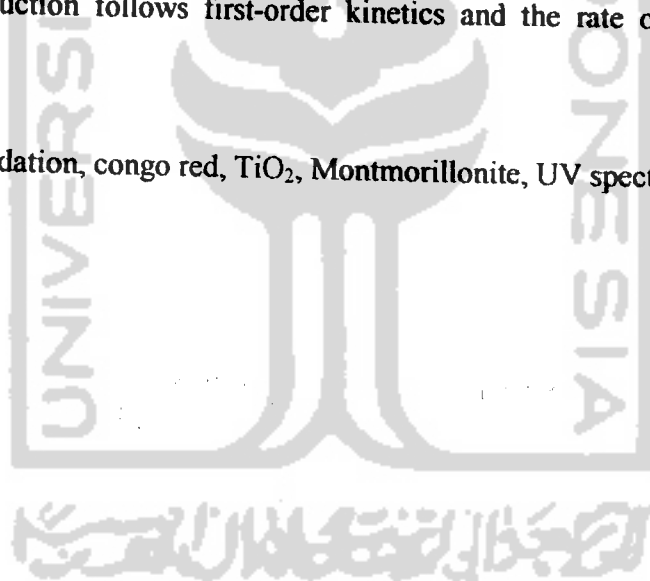
Ira Festianti
NIM 00 612 051

Synthesis of TiO₂-pillared montmorillonite and its application as a catalyst for congo red degradation has been carried out.

TiO₂-pillared montmorillonite was synthesized by intercalating Ti polycation (pillaring agent) into gallery of the montmorillonite. The calcined product was analyzed by X-ray diffractometry, porosimetry and neutron activation analysis methods. The congo red photodegradation was studied by UV-spectroscopy method.

The XRD analysis results showed that the basal spacings of TiO₂-pillared montmorillonite was 6,56 Å. The porosimetry analysis results showed that the increasing of specific surface area was 208.12 m²/g. The increasing of total pore volume was 167,87 x 10⁻³ mL/g clay. The content of Ti in the TiO₂-pillared montmorillonite was 26,87% (w/w). It indicated that the pillarization of pillared montmorillonite with TiO₂ was successful. The UV spectrophotometry analysis showed that the congo red concentration was decreased after the suspension of TiO₂-pillared montmorillonite-congo red was exposed by UV-light. The kinetic study of the congo red degradation showed that the rate of destruction follows first-order kinetics and the rate of reaction was 0,00609 minute⁻¹.

Key word: Photodegradation, congo red, TiO₂, Montmorillonite, UV spectroscopy.



KATA PENGANTAR

Assalamu'alaikum wr. wb.

Puji serta syukur kami panjatkan kehadirat Allah SWT yang telah melimpahkan rahmat dan hidayah-Nya dan yang telah membukakan hati serta pikiran penulis sehingga dapat dengan lancar menyelesaikan skripsi yang berjudul *Fotodegradasi Congo Red dengan Katalis TiO₂ Montmorillonit dan Sinar UV*. Shalawat serta salam tidak lupa pula kami haturkan kepada Nabi kita bersama Muhammad SAW pembawa risalah petunjuk untuk mencapai kebahagiaan baik di dunia maupun di akhirat.

Skripsi ini disusun untuk memenuhi syarat mencapai gelar Sarjana Sains pada Jurusan Ilmu Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Islam Indonesia. Dengan penelitian ini diharapkan dapat mendatangkan manfaat bagi masyarakat umumnya dan bagi ilmu pengetahuan pada khususnya.

Dalam penulisan skripsi ini tidak terlepas dari banyaknya bantuan moril maupun materil dari berbagai pihak, pada kesempatan ini, dengan tulus dan ikhlas penulis mengucapkan terimakasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Bapak Jaka Nugraha, M.Si, selaku Dekan Fakultas MIPA, Universitas Islam Indonesia.
2. Bapak Rudy Syahputra, M.Si, selaku Ketua Jurusan Kimia, Universitas Islam Indonesia.
3. Bapak Dr.rer.nat. Karna Wijaya, M.Eng, selaku dosen pembimbing I yang telah banyak memberikan bimbingan dalam penyusunan skripsi ini sehingga dapat diselesaikan dengan baik.
4. Ibu Is Fatimah, M.Si, selaku dosen pembimbing II yang dengan sabar membantu penyelesaian skripsi ini.

5. Seluruh dosen Jurusan Kimia, Fakultas MIPA, Universitas Islam Indonesia, terimakasih atas didikan dan ilmu pengetahuan yang telah banyak diberikan.
6. Sahabat-sahabatku dimanapun berada namun tetap di hati, terimakasih telah memberikan semangat di setiap pilihan yang aku ambil, dan telah menjadi teman curhat di setiap saat.
7. Saudara-saudaraku seperjuangan, teman-temanku Jurusan Kimia angkatan 2000, terimakasih atas dukungan dan persahabatannya.

Semoga Allah SWT akan membalas atas kebaikan dan bantuannya.

Penulis menyadari bahwa dalam penyusunan skripsi ini masih jauh dari sempurna, penulis mengharapkan adanya kritikan dan saran yang sekiranya dapat membangun dari segala pihak untuk perbaikan kedepannya. Semoga dengan segala kekurangan skripsi ini masih dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan pada umumnya dan bagi semua pihak yang membutuhkan pada khususnya. Amien.

Wassalamu'alaikum wr. wb.

Jogjakarta, Februari 2005

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
LEMBAR PENGESAHAN.....	ii
HALAMAN PERSEMBAHAN	iii
INTISARI	iv
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL	xi
DAFTAR LAMPIRAN	xii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1. Latar Belakang	1
1.2. Rumusan Masalah	3
1.3. Tujuan Penelitian	3
1.4. Manfaat Penelitian	3
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	4
2.1. Lempung dan Lempung Terpilar	4
2.2. Fotokatalis	6
BAB III LANDASAN TEORI	10
3.1. Mineral Lempung	10
3.2. Lempung Montmorillonit	10
3.3. Interkalasi pada Montmorillonit	12
3.4. Konsep Pilarisasi	12
3.5. Titanium Dioksida	15
3.6. Congo Red	15
3.7. Karakterisasi Terhadap Montmorillonit Terpilar	16
3.7.1. Penggunaan Difraksi Sinar-x dalam Analisis Montmorillonit	17

3.7.2. Penggunaan Metode Analisis Pengaktifan Neutron (APN) pada Analisis Lempung	18
3.7.3. Analisis dengan Metode BET	19
3.7.4. Analisis Menggunakan Spektrofotometri UV-VIS	19
3.9. Hipotesis	21
BAB IV METODOLOGI PENELITIAN	22
4.1. Bahan dan Alat	22
4.2. Prosedur Penelitian	22
4.2.1. Preparasi Montmorillonit Alam	22
4.2.2. Sintesis TiO ₂ Montmorillonit	23
4.2.3. Fotodegradasi <i>Congo Red</i> Menggunakan TiO ₂ Montmorillonit Sebagai Fotokatalis	24
BAB V HASIL DAN PEMBAHASAN	26
5.1. Preparasi Montmorillonit	26
5.2. Sintesis Montmorillonit Terpilar TiO ₂	27
5.3. Fotodegradasi <i>Congo Red</i> Menggunakan TiO ₂ Montmorillonit Sebagai katalis	30
BAB VI KESIMPULAN DAN SARAN	33
6.1. Kesimpulan	33
6.2. Saran	33
DAFTAR PUSTAKA	34
LAMPIRAN	

DAFTAR GAMBAR

Gambar 1	Struktur Lempung Montmorillonit	4
Gambar 2	Skema Pembentukan Lempung Terpillar (Vanasant, 1990)	6
Gambar 3	Mekanisme Fotokatalitik	7
Gambar 4	(a) Model Struktur Montmorillonit Menurut Edelman dan Favajee, dan (b) Model Struktur Menurut Hofmann dan Endell	11
Gambar 5	Skema Pembentukan Lempung Terpillar (Leonard, 1995)	14
Gambar 6	Pemilaran Antarlapis Silikat Lempung dengan TiO_2	14
Gambar 7	Struktur <i>Congo Red</i>	16
Gambar 8	Skematik Berkas Sinar-X yang Memantul Pada Bidang Kristal Mengikuti Hukum Bragg	17
Gambar 9	Pola Difraksi Lempung Alam	27
Gambar 10	Pola Difraksi Lempung Terpillar	28
Gambar 11	Distribusi Ukuran Pori dari Montmorillonit alam dan Montmorillonit terpillar TiO_2	30
Gambar 12	Pengaruh Lama Penyinaran Terhadap Pengurangan Jumlah <i>Congo Red</i> untuk Fotodegradasi Dengan Katalis Montmorillonit Terpillar TiO_2 dan Montmorillonit Alam	31

DAFTAR TABEL

Tabel 1	Perlakuan TiO_2 Montmorillonit pada Degradasi <i>Congo Red</i> ...	24
Tabel 2	Presentase Kehilangan Zat Warna Setelah Penyinaran dan Menggunakan Katalis TiO_2 Montmorillonit	25
Tabel 3.	Kandungan Unsur yang Terdapat dalam Montmorillonit Alam dengan Metode APN	26
Tabel 4	Hasil Pengukuran Kandungan Ti dengan Metode APN dari Montmorillonit Alam dan Montmorillonit Terpilar TiO_2	29
Tabel 5	Data Luas Permukaan Spesifik dan Total Volume Pori dari Montmorillonit Alam dan Montmorillonit Terpilar TiO_2	29



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1	Data Kandungan Lempung Bentonit dari PT. Tunas Inti Makmur, Semarang	36
Lampiran 2	Data Absorbansi dan Konsentrasi <i>Congo Red</i> Setelah Fotodegradasi dengan Sinar UV dan Dikatalis dengan Montmorillonit Alam dan Montmorillonit TiO ₂	37
Lampiran 3	Data Persentase Pengurangan <i>Congo Red</i> Setelah Dikatalis dengan Sinar UV serta Montmorillonit Alam dan Montmorillonit TiO ₂	38
Lampiran 4	λ_{maks} dari <i>Congo Red</i>	40
Lampiran 5	Difaktogram Sinar-X dari Montmorillonit Alam	41
Lampiran 6	Difaktogram Sinar-X dari Montmorillonit Terpillar TiO ₂	43
Lampiran 7	Perhitungan <i>Outliers</i> data	46
Lampiran 8	Data Orde Reaksi	47
Lampiran 9	Perhitungan Kinetika Reaksi Fotodegradasi dengan TiO ₂ Montmorillonit Mengikuti Orde 1	49

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Indonesia merupakan salah satu negara yang mempunyai sumber daya mineral yang cukup besar dan berpeluang untuk dikembangkan. Salah satu mineral yang banyak terdapat di Indonesia adalah lempung alam bentonit berupa tanah yang umumnya berwarna kecoklat-coklatan dan mudah dibentuk dalam keadaan basah dan mengeras dengan warna kemerah-merahan jika dibakar. Tanah lempung dalam kehidupan sehari-hari juga dapat diketahui manfaatnya baik secara langsung maupun secara tak langsung. Tanah tersebut selain digunakan untuk bahan pembuat batu-bata, kerajinan tembikar dan genteng juga dapat dipakai sebagai bahan pengisi dalam industri kertas, cat dan karet sebagai penukar ion, kation, katalis dan adsorben. Aplikasi lempung sangat luas menyebabkan lempung sering disebut dengan material multiguna.

Di negara-negara industri, penggunaan lempung alam bentonit sebagai katalis sesungguhnya telah lama dilakukan. Pinnavia pada tahun 1983, melaporkan bahwa penggunaan lempung alam bentonit yang telah diaktifkan dengan asam sebagai perengkah (*cracking catalyst*) minyak bumi untuk mendapatkan bensin telah dilakukan pada tahun 1933 oleh Houndry. Namun pada tahun 1960-an lempung alam tidak digunakan lagi sebagai katalis karena antar lapis lempung menjadi rusak (*collapse*) jika dipanaskan diatas 200°C. Baru pada tahun 1977 Brindley mempopulerkan kembali penggunaan lempung sebagai bahan katalis.

Dengan memanfaatkan kandungan montmorillonitnya yang memiliki struktur

sifat fisik dan kimianya menjadi lebih baik dari sebelumnya. Sifat fisik dan kimia tersebut meliputi *basal spacing* (d_{001}), luas permukaan spesifik, porositas, sifat semi konduktor dan keasaman permukaan. Sifat-sifat fisik dan kimia ini merupakan syarat mutlak dalam peranannya sebagai katalis, pendukung katalis, untuk adsorben dan juga sebagai alternatif penyediaan bahan berpori dengan luas permukaan yang relatif cukup tinggi. Salah satu cara modifikasi yang saat ini banyak dilakukan oleh para peneliti adalah pilarisasi mineral montmorillonit yang merupakan komponen utama bentonit. Pilarisasi montmorillonit dengan oksida titan yang bersifat semi konduktor dapat dimanfaatkan sebagai fotokatalis untuk degradasi zat warna.

Penelitian mengenai aktivitas fotokatalitik oksida titan murni (TiO_2) dalam mendegradasi zat organik telah banyak dilakukan karena selain memiliki energi *band gap* (E_g) relatif besar, TiO_2 juga relatif stabil dan murah. Seperti yang dilaporkan oleh Nogueira dan Jardim (1993), efektifitas semi konduktor TiO_2 untuk mendegradasi metilen biru dengan bantuan sinar matahari menunjukkan hasil yang cukup efektif. Penelitian tentang kemampuan fotokatalik TiO_2 yang diimbangkan dalam zeolit juga telah dilaporkan. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa TiO_2 yang diimbangkan dalam zeolit memiliki fotoaktivitas yang lebih tinggi daripada TiO_2 yang tidak diimbangkan dalam zeolit.

Dari uraian diatas, maka penelitian ini akan dilakukan uji-coba bahan fotokatalis montmorillonit terpillar oksida titan untuk keperluan degradasi zat warna *Congo Red*. Katalis dibuat dengan cara mempilarikan montmorillonit dari lempung bentonit dengan bahan semikonduktor oksida titan sehingga terbentuk senyawa montmorillonit terpillar yang memiliki luas permukaan besar dengan distribusi mikro dan mesopori yang baik serta memiliki sifat semikonduktor.

Dari penelitian ini diharapkan dapat dibuat suatu bahan fotokatalis berupa montmorillonit terpillar oksida titan, selain itu penelitian ini juga diharapkan dapat menyumbang informasi tentang kemampuan fotodegradasi dari montmorillonit terpillar bahan semikonduktor oksida titan terhadap zat warna *congo red*. Di masa datang jika penelitian ini telah berhasil secara memuaskan maka kita dapat mengembangkan sendiri bahan pendegradasi zat warna dengan menggunakan bahan baku bentonit Indonesia.

1.2 Rumusan Masalah

1. Apakah pemiliran montmorillonit dengan oksida titan dapat mempengaruhi sifat-sifat kimia fisik dari montmorillonit?
2. Bagaimana cara mendegradasi zat warna *congo red* dengan menggunakan katalis TiO_2 montmorillonit dengan bantuan sinar UV?

1.3 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan dari penelitian ini adalah untuk memfungsikan TiO_2 montmorillonit sebagai katalis dalam fotodegradasi zat warna *congo red*.

1.4 Manfaat Penelitian

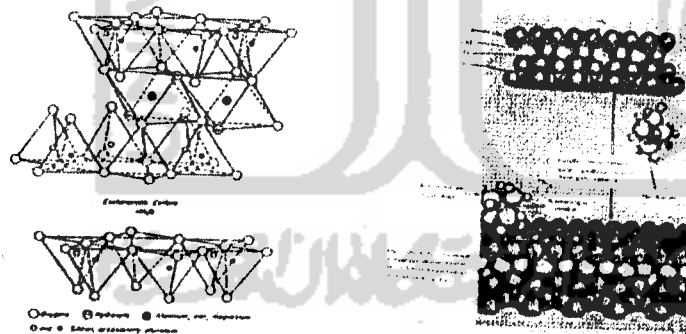
Dari hasil penelitian ini diharapkan dapat memberikan sumbangan informasi tentang kemampuan fotodegradasi dari montmorillonit terpillar bahan semikonduktor TiO_2 untuk menguraikan *congo red* sebagai penyebab pencemaran lingkungan.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Lempung dan Lempung Terpilar

Secara geologis tanah lempung adalah mineral alam dari keluarga silikat yang berbentuk stuktur berlapis dan mempunyai ukuran partikel lebih kecil dari 2 mikrometer, bersifat liat jika basah serta keras jika kering. Diantara lapisnya terdapat kation-kation yang berfungsi menyetimbangkan muatan negatif yang ada pada bidang lapisnya. Mineral ini dapat dibagi menjadi beberapa kelompok, yaitu kelompok kaolinit, smektit dan klorit. Di antara lempung diatas, smektit memiliki kemampuan untuk mengembang. Selain itu mineral ini juga mempunyai kemampuan kapasitas penukar ion yang tinggi sehingga mampu mengakomodasi kation dalam *interlayernya* Dalam jumlah yang besar (Wijaya, 1993, Ogawa, 1992). Gambar 1 memperlihatkan struktur lempung kelompok smektit.



Gambar 1. Struktur lempung montmorillonit

Secara kimiawi lempung terpilar didefinisikan sebagai turunan smektit yang kation-kationnya telah ditukar dengan kation-kation berukuran besar dan kation-kation tersebut berperan sebagai pilar atau tiang di antara lapisnya. Pilarisasi dapat dilakukan dengan interkalasi senyawa kompleks kation logam polihidroksi (Al-, Cr-, Zr-, Ti-, dan Fe-polihidroksi) kedalam antarlapis silikat lempung (Baksh dkk., 1992; Drljaca dkk.,

1997) yang selanjutnya dikalsinasi untuk membentuk pilar-pilar oksida logam (Al_2O_3 , Cr_2O_3 , ZrO_2 , TiO_2 dan Fe_2O_3) (Yang dkk., 1992)

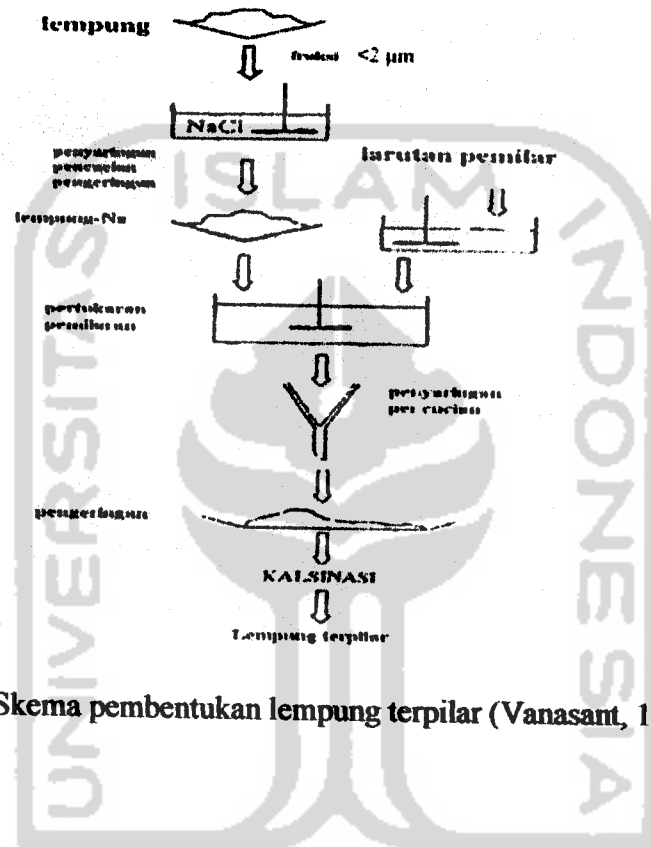
Berbagai kation telah digunakan sebagai agen pemilar di antaranya adalah ion-ion alkilamonium, kation amina bisiklis dan beberapa kation kompleks logam khelat dan kation logam polihidroksi. Di antara agen pemilar tersebut, kation logam polihidroksi paling stabil terhadap pengaruh panas. Agen pemilar ion-ion alkilamonium dan kation amina bisiklik dapat mengalami dekomposisi pada temperatur dibawah 250°C dan kompleks logam khelat dapat mengalami degradasi pada temperatur di bawah 400°C , sedang kation logam polihidroksi cukup stabil pada temperatur di atas 500°C (Pinnavaia, 1983).

Pemiliran antar lapis silikat lempung dengan titanium oksida (TiO_2) pada dasarnya merupakan interkalasi agen pemilar senyawa kompleks Ti (kation Ti polihidroksi) ke dalam antarlapis silikat lempung melalui mekanisme pertukaran kation Ti-polihidroksi dengan kation-kation Na^+ , K^+ dan Ca^{2+} yang ada pada lempung. Kation-kation yang ditukarkan oleh Ti-polihidroksida tersebut selanjutnya dikalsinasi untuk membentuk pilar atau tiang oksida logam, TiO_2 (Sterte, 1986)

Pada penelitian ini menggunakan lempung terpillar sebagai adsorben akan dicoba untuk mengadsorpsi limbah pencemaran lingkungan dari zat warna yang digunakan oleh masyarakat. Lempung yang digunakan adalah lempung montmorillonit terpillar TiO_2 , didasarkan pada lempung terpillar TiO_2 memiliki luas permukaan yang lebih tinggi dibandingkan dengan pemilar oksida lain yang pernah dilakukan.

Melalui metode interkalasi dan dengan memilih agen pemilar yang sesuai maka akan didapat suatu lempung terpillar yang memiliki tinggi pilar tertentu. Gambar 2. memperlihatkan proses pembentukan lempung terpillar (*pillared clay*) (Wijaya, 1995; Urabe & Sakurai, 1986; Vansant, 1990).

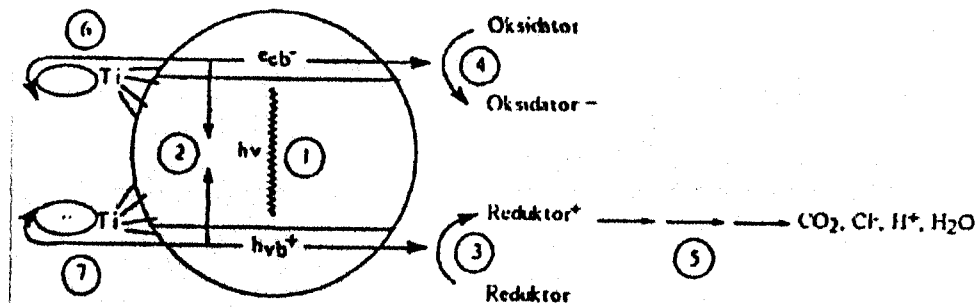
Salah satu jenis lempung terpillar yang memiliki stabilitas termal, distribusi mikroporositas dan makroporositas serta luas permukaan tinggi adalah lempung terpillar dengan pilar terbuat dari oksida-oksida logam, seperti TiO_2 , Al_2O_3 dan Cr_2O_3 . Senyawa oksida logam smektit tersebut dapat dibuat dengan cara menginterkalasikan smektit dengan oligokations titan, aluminium, krom atau besi.



Gambar 2. Skema pembentukan lempung terpillar (Vanasant, 1990)

2.2 Fotokatalis

Menurut kamus kimia organik, fotokatalis adalah zat yang dapat menggalakan reaksi yang dikatalis oleh cahaya. Suatu semikonduktor dapat berfungsi sebagai fotokatalis untuk reaksi fotodegradasi senyawa-senyawa organik. Reaksi fotodegradasi tersebut terjadi melalui mekanisme oksidasi-reduksi karena karakter struktur elektroniknya yang memiliki pita valensi terisi dan pita konduksi yang kosong.



Gambar 3. Mekanisme fotokatalitik

Gambar diatas menunjukkan tahapan utama mekanisme fotokatalitik yang meliputi:

1. Pembentukan pembawaan muatan oleh foton: jika suatu semikonduktor fotokatalis dikenai suatu energi foton $h\nu$, maka elektron pada pita valensi akan tereksitasi ke dalam pita konduksi (e_{cb^-}) sambil meninggalkan lubang (*hole*) pada pita valensi ($h\nu_b^+$).
2. Rekombinasi pembawa muatan: elektron pada pita konduksi (e_{cb^-}) dan lubang pada pita valensi ($h\nu_b^+$) akan bergabung dan menghasilkan energi panas.
3. Inisiasi reaksi oksidasi oleh lubang pada pita valensi ($h\nu_b^+$): yang akan bereaksi dengan substrat (reduktor).
4. Inisiasi reaksi reduksi oleh elektron pada pita konduksi (e_{cb^-}): yang akan bereaksi dengan oksidator yaitu oksigen.
5. Reaksi fotoreduksi terkatalis dan reaksi termal lanjutan (reaksi dengan oksigen aktif) akan menghasilkan gas CO_2 atau zat-zat mineral.
6. Penjebakan (*trapping*) elektron pada pita konduksi (e_{cb^-}) ke dalam ikatan *Dangling* pada permukaan membentuk Ti (III).
7. Penjebakan (*trapping*) lubang pada pita valensi ($h\nu_b^+$) ke dalam gugus titanol pada permukaan.

Kemampuan suatu semikonduktor sebagai foto katalis ditunjukkan oleh harga E_g . Harga E_g yang semakin besar menunjukkan fotoaktifitas yang makin tinggi. Harga E_g akan semakin meningkat seiring dengan semakin turunnya ukuran partikel (Brus, 1984).

Kemampuan suatu semikonduktor fotokatalis oksida logam transisi dilaporkan dapat mengalami peningkatan apabila memiliki ukuran partikel dalam kisaran nanometer (Ekimav dkk., 1985). Apabila terjadi penurunan dimensi partikel semikonduktor sampai ke daerah nanometer (1-10 nm) ternyata terjadi kenaikan energi *band gap* (E_g), sebagai ukuran kemampuan fotokatalis, seiring dengan semakin turunnya ukuran partikel. Suatu partikel nano semikonduktor fotokatalis hanya dapat dibuat dalam suatu matriks yang berpori dengan kisaran dimensi pada skala nanometer seperti lempung, aerogel dan zeolit (Sampath dkk., 1994)

Pengujian kemampuan TiO_2 yang diimbakan dalam beberapa jenis zeolit seperti MCM41, zeolit X dan zeolit Y sebagai fotokatalis untuk reaksi fotodegradasi asetofenon dalam medium cair telah dilaporkan oleh Xu dan Langford (1997). Hasil yang diperoleh dari penelitian tersebut menunjukkan bahwa kemampuan fotokatalitik TiO_2 ditentukan oleh faktor kristalinitas dan ukuran pori yang disediakan oleh zeolit. Telah dilaporkan pula bahwa penekanan rekombinasi pembawa muatan melalui pembuatan elektroda khusus TiO_2 sebagai semikonduktor mengakibatkan terjadinya peningkatan terhadap kemampuan fotokatalisnya dalam mendegradasi 4-klorofenol (Vinodgopal., 1993)

Degradasi senyawa organik sebagian besar mengikuti reaksi tingkat satu seperti yang dilaporkan oleh Modestov dkk. (1997). Laporan ini didukung penelitian yang dilakukan oleh Nogueira dan Jardim (1993) yang mengamati fotodegradasi metilen biru oleh sinar matahari dengan menggunakan katalis TiO_2 . Aktivitas TiO_2 untuk

mendegradasi metilen biru dalam penelitian tersebut cukup baik, dimana sampel metilen biru dapat terdegradasi sampai 99% dalam waktu satu jam. Persentase tersebut termasuk kontribusi dari proses adsorpsi yang terjadi bersamaan dengan fotodegradasi oleh TiO_2 .



BAB III

LANDASAN TEORI

3.1 Mineral Lempung

Lempung merupakan salah satu fraksi anorganik tanah yang tergolong sangat halus ($<0,002$ mm), fraksi anorganik lainnya adalah debu yang berukuran $0,050-0,002$ mm dan fraksi kasar yang disebut pasir memiliki ukuran $0,050$ mm. Dalam lempung kristal tersusun atom yang dapat terulang dalam pola yang teratur kearah tiga dimensi. Sedangkan dalam keadaan amorf umumnya tidak mempunyai bentuk yang dapat dikenal ataupun susunan internal secara geometri (Tan, 1982). Komponen-komponen tanah yang lain adalah mineral non lempung, lempung non kristal, zat organik yang berupa koloid dan endapan garam-garam anorganik (Setyowati, 1995). Struktur dasar mineral lempung merupakan alosilikat atau lapisan silikat yang tersusun atas lembaran tetrahedral silisium-oksigen dan lembaran octahedral alumonium-oksigen-hidroksida (Murtado, 1994). Lapisan silikat dibangun melingkari suatu tetrahedral silika dengan tiap atom oksigen menerima 1 valensi dari atom silisium. Untuk memenuhi persyaratan divalennya atom oksigen dapat disambungkan ke kation lain atau ke atom silisium dari tetrahedralsilika terdekat. Dalam lembaran tetrahedral Si-O, atom silisium berikatan dengan atom O_2 . Atom-atom O_2 tersebut terletak pada empat sudut yang teratur dalam bentuk tetrahedral dengan atom silisium sebagai pusatnya.

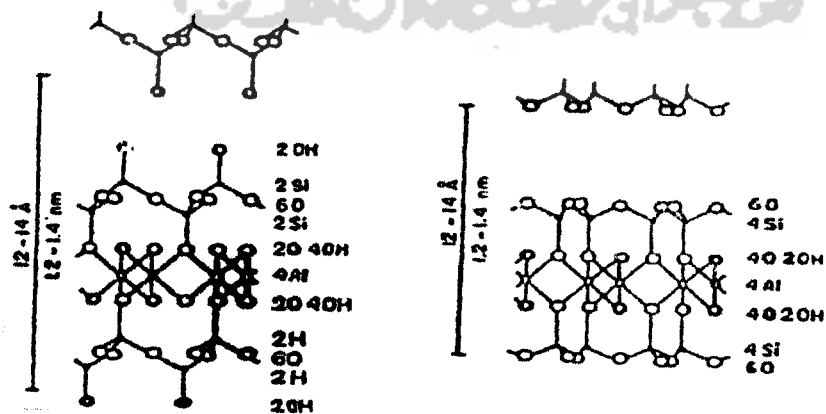
3.2 Lempung Montmorillonit

Montmorillonit merupakan anggota kelompok smektit yang paling banyak di alam. Mineral ini mempunyai system triklin dengan parameter $a:5,17$ $b:8,94$ $c:9,95$. Dari berbagai mineral lempung tersebut, montmorillonit merupakan kelompok

lempung yang paling banyak menarik perhatian karena montmorillonit memiliki kemampuan untuk mengembang dan memiliki kation yang dapat ditukarkan (*exchangeable cation*) serta dapat diinterkalasi (Pinnavia, 1983). Kapasitas tukar kation yang tinggi membuat montmorillonit mampu mengakomodasi kation dalam antarlapisnya dalam jumlah besar (Ogawa, 1992).

Dua tipe struktur telah diusulkan untuk montmorillonit yaitu struktur menurut (1) Hofmann dan Endell dan (2) Edelman dan Favajee. Kedua hipotesa tersebut menunjukkan kemiripan dalam hal struktur sel unit yang dianggap simetris, yang berlawanan dengan yang ada pada kaolinit. Satu lembar octahedral aluminium diapit oleh dua lembar tetrahedral silika.

Ikatan yang menahan lapisan-lapisan bersama secara nisbi lemah. Ikatan yang menimbulkan pembentukan ruang antarlapis yang akan mengembang dengan kenaikan kadar air. Namun demikian ada perbedaan antara struktur Hofmann dan Endell dengan struktur Edelman dan Favajee yaitu terletak pada susunan jaringan tetrahedral silika. Edelman dan Favajee berpendapat bahwa ada suatu susunan alternatif dari tetrahedral silika dengan ikatan Si-O-Si bersudut 180° , dengan bidang dasar yang terdiri dari gugus-gugus OH yang terikat pada silika tetrahedral (Tan, 1982). Pada gambar 4. ditunjukkan perbandingan struktur montmorillonitnya



Gambar 4. (a) model struktur montmorillonit menurut Edelman dan Favajee, dan (b) model struktur menurut Hofmann dan Endell.

3.3 Interkalasi Pada Montmorillonit

Interkalasi adalah suatu penyisipan reversibel suatu spesies kimia (molekul, ion) ke dalam ruang antarlapis senyawa berstruktur lapis (*layered structure*) (constantino, 1991). Reaksi interkalasi merupakan reaksi penting karena reaksi ini banyak dipergunakan dalam pembuatan katalis, adsorben, elektrolit, penukar ion dan sebagainya.

Menurut proses pembentukannya, senyawa interkalasi dapat diklasifikasikan sebagai berikut (Yanagisawa, 1996):

- a. Senyawa interkalasi yang terbentuk dari ikatan hidrogen antara spesies tamu (*guest species*) dengan spesies tuan rumah (*host material*).
- b. Senyawa interkalasi yang terbentuk dari pertukaran ion.
- c. Senyawa interkalasi yang terbentuk dari interaksi dvi kutub antara spesies tamu dan ion-ion di dalam ruang antarlapis senyawa berstruktur lapis
- d. Senyawa interkalasi yang terbentuk dari ikatan kovalen antara spesies tamu dan *host layers*.

Dalam beberapa literatur kelompok senyawa ini tidak dimasukkan dalam kelompok senyawa interkalasi karena sifatnya yang tak terbalikan

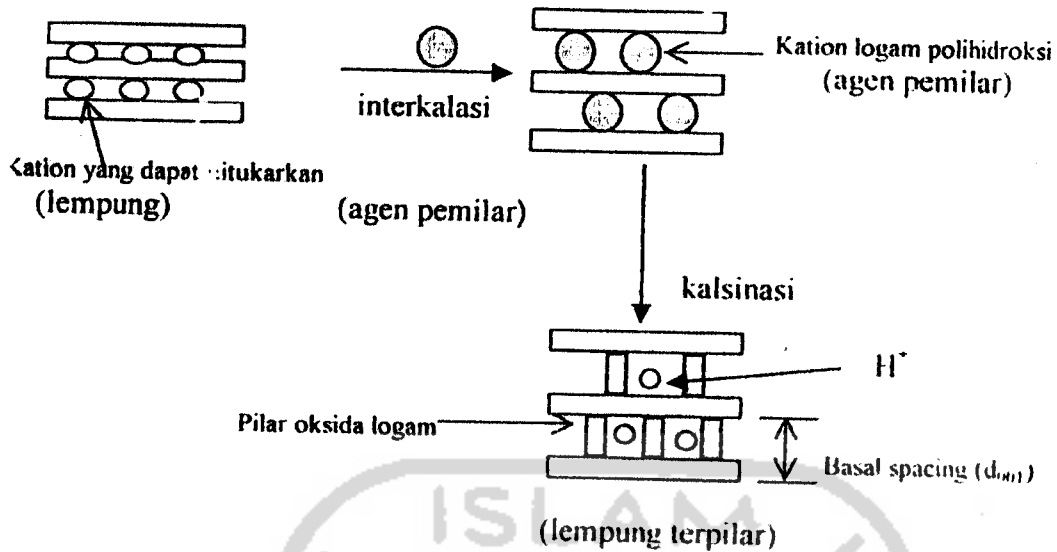
3.4 Konsep Pilarisasi

Pilarisasi merupakan interkalasi agen pemilar ke dalam struktur material berlapis. Interkalasi merupakan suatu proses penyisipan atom-atom atau molekul-molekul secara dapat balik (*reversible*) ke dalam antarlapis material berlapis dengan tidak merusak struktur lapisan tersebut (Ogawa, 1992). Atom-atom atau molekul-molekul yang disisipkan biasa disebut interkalat (*intercalate*) sedangkan iapisan yang merupakan tempat interkalat yang akan masuk disebut (*interkalant*). Dengan masuknya

ke dalam interkalan maka susunan yang dimiliki interkalan mengalami perubahan. Perubahan tersebut terjadi disebabkan lapisan terdekat terhalangi oleh interkalat karena memiliki ukuran molekul yang lebih besar dari molekul asalnya.

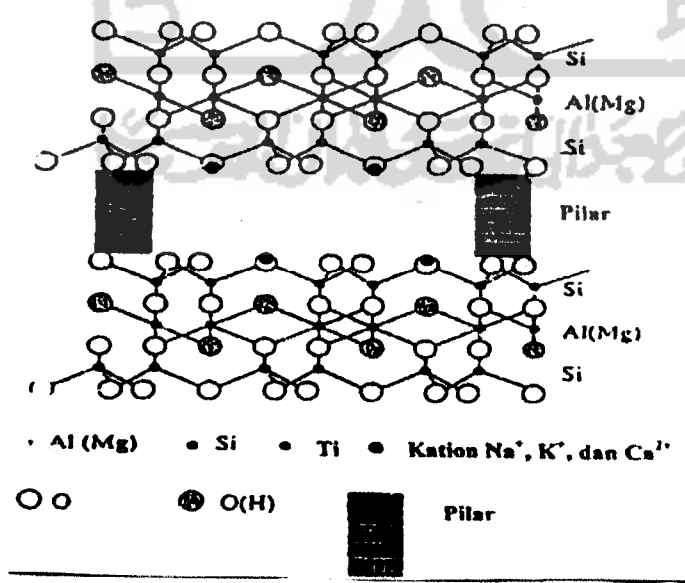
Pemiliran pada antarlapis silikat lempung dapat dilakukan dengan interkalasi agen pemilar kation (ion bermuatan positif) logam polihidroksi menggantikan kation-kation yang ada di antara lapisan silikat lempung seperti Na^+ , K^+ dan Ca^+ . Interkalasi terjadi karena interkalat yang masuk berupa kation menggantikan kation-kation yang ada pada antarlapis silikat lempung. Kation tersebut umumnya tidak kuat terikat sehingga sangat mudah bergeser atau ditukarkan oleh kation-kation interkalat. Kation logam polihidroksi yang masuk ke dalam antarlapis silikat lempung selanjutnya dikalsinasi untuk membentuk pilar-pilar oksida logam yang stabil (Baksh dkk., 1992; Yang dkk., 1992; Mokaya dan Jones, 1995). Pilar-pilar oksida logam yang terbentuk berfungsi sebagai pengikat antarlapis silikat lempung sehingga struktur yang dimiliki lempung menjadi lebih kuat dan relatif lebih kuat terhadap perlakuan panas dibandingkan dengan lempung tanpa terpillar yang dapat mengalami kerusakan struktur di atas temperatur 200°C .

Pemiliran antarlapis silikat lempung dengan titanium dioksida (TiO_2) pada dasarnya merupakan interkalasi agen pemilar senyawa kompleks Ti (kation Ti-polihidroksi) ke dalam antarlapis silikat lempung melalui mekanisme pertukaran kation antara kation Ti-polihidroksi dengan kation-kation Na^+ , K^+ dan Ca^+ yang ada pada lempung. Berikut ini akan digambarkan proses pembentukan lempung terpillar seperti yang ditunjukkan gambar 5.



Gambar 5. Skema pembentukan lempung terpilar (Leonard, 1995)

Terbentuknya pilar atau tiang oleh molekul TiO_2 menjadikan antarlapis silikat akan terekspansi atau terhalangi oleh adanya molekul tersebut karena molekul yang terbentuk mempunyai ukuran relatif lebih besar dari molekul asalnya. Pemilaran antarlapis silikat lempung dengan TiO_2 ditunjukkan pada gambar 6. berikut (Cheng dan Yang, 1995)



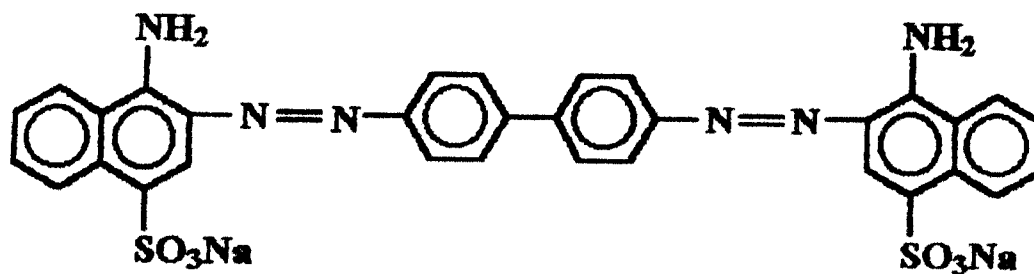
Gambar 6. Pemilaran antarlapis silikat lempung dengan TiO_2 .

3.5 Titanium Dioksida

Titanium dioksida (TiO_2) merupakan padatan berwarna putih, tidak larut dalam HCl, HNO_3 dan aquaregia tetapi dapat larut dalam asam sulfat membentuk titanium sulfat, $\text{Ti}(\text{SO}_4)$. Titanium (Ti) adalah unsur logam transisi dapat membentuk ion titanium (III), Ti^{3+} dan titanium (IV), Ti^{4+} . Titanium (III) yang dicirikan dengan warna lembayung, sedangkan titanium (IV) tidak berwarna. Ion titanium (III) dalam air bersifat kurang stabil dan mudah mengalami oksidasi menjadi titanium (IV). Ion titanium (IV) berada hanya dalam larutan yang bersifat sangat asam ($\text{pH} < 2,5$), dapat terhidrolisis mula-mula membentuk ion titanil (TiO^{2+}) selanjutnya membentuk keseimbangan dengan $\text{Ti}(\text{OH})_2^{2+}$ dan Ti^{4+} . Bila keasaman diturunkan ($\text{pH} > 2,5$) maka dapat membentuk endapan $\text{Ti}(\text{OH})_4$, $(\text{Ti}_3\text{O}_4)^{4+}$ atau $\text{TiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (Cotton dkk., 1999). Titanium (IV) dalam larutan asam klorida (konsentrasi $< 12 \text{ M}$) berada dalam bentuk kation polihidroksi, $[(\text{TiO})_8(\text{OH})_{12}]$, sedangkan dalam larutan dengan konsentrasi $> 12 \text{ M}$ dapat membentuk *trans*- $[\text{Ti}(\text{OH})_2\text{Cl}_4]^{2-}$ dan $[\text{Ti}(\text{OH})(\text{H}_2\text{O})\text{Cl}_4]^-$ (Sterte, 1986; Cotton dkk., 1999). Bila dalam larutan asam sulfat dapat membentuk ion kompleks mononuklir $[\text{Ti}(\text{OH})_2(\text{HSO}_4)(\text{H}_2\text{O})_3]^+$, $[\text{Ti}(\text{OH})_3(\text{HSO}_4)(\text{H}_2\text{O})_2]$ dan $[\text{TiOSO}_4(\text{H}_2\text{O})_4]$ (Manku, 1984; Cotton dkk., 1999).

3.6 Congo Red

Congo Red menurut indeks Merck (Strecher dkk., 1968) merupakan senyawa kimia yang berwarna merah, mempunyai pH range 3-5, dalam keadaan basa berwarna merah, dan dalam keadaan asam berwarna violet, larut dalam air dan larut dalam etanol sebesar 0,19%. Rumus empiris dari *Congo Red* $\text{C}_{32}\text{H}_{22}\text{N}_6\text{O}_6\text{S}_2\text{Na}_2$ (diphenyl diazo-bis-1 naphthyl amine-1-sodium sulfonate). Dengan rumus struktur seperti pada gambar 7.



Gambar 7. Struktur *Congo Red*

Congo Red mempunyai beberapa sifat, antara lain: Meledak dalam keadaan kering, meledak jika terjadi guncangan, gesekan dan panas, mudah terbakar secara spontan di udara terbuka, berbahaya bagi pernafasan, mata dan kulit, jika bercampur dengan air dan asam mengakibatkan gas beracun, dapat menyebabkan kanker, Beracun untuk hewan dan tumbuhan.

Penyimpanan *Congo Red* dapat dilakukan dengan cara sebagai berikut: Simpan dalam tempat tertutup, jauhkan dari jangkauan anak-anak, simpan di tempat sejuk, masukan dalam botol kering, jauhkan dari panas, hindari kontak dengan mata dan kulit.

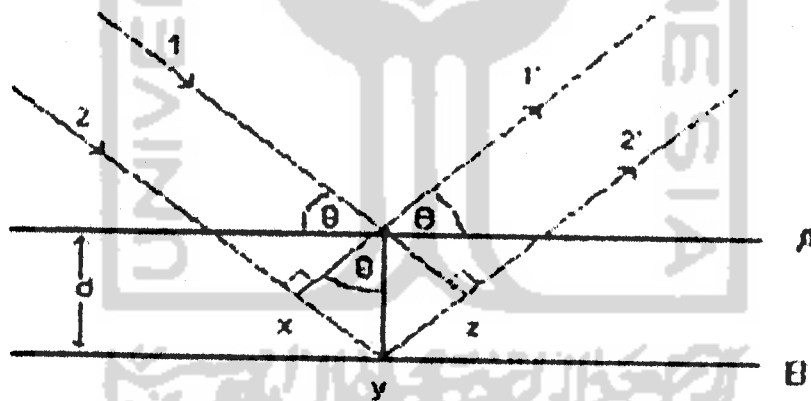
3.7 Karakterisasi Terhadap Montmorillonit Terpillar

Metode yang digunakan dalam menentukan beberapa sifat fisik seperti luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, volume total pori, distribusi ukuran pori dan isotherm adsorpsi adalah dengan isotherm BET. Sifat fisik yang lain seperti *basal spacing* diidentifikasi dengan metode difraksi sinar-X dengan jarak dasar antar bidang d_{001} . Sifat kimia yang meliputi jumlah kandungan Ti yang terikat dalam lempung terpillar dianalisis dengan metode Analisis Pengaktifan Neutron (APN) (Susetyo, 1988).

3.7.1. Penggunaan Difraksi Sinar-X Dalam Analisis Montmorillonit

Spektroskopi sinar X adalah suatu analisis kimia yang didasarkan pada interaksi antar materi dengan radiasi elektromagnetik sinar-X. Sinar-X mempunyai radiasi elektromagnetik dengan $\lambda=0,5 - 2,5 \text{ \AA}$ dan energi $= \pm 10^7 \text{ eV}$. Metode ini hanya digunakan untuk menganalisis padatan kristalin. Dimana dasar analisis kimianya adalah bahwa setiap kristal mempunyai jarak antar bidang (d) kristal yang karakteristik. Kristal adalah zat padat yang atom-atomnya tersusun menurut pola yang berulang dalam tiga dimensi.

Hukum Bragg menyatakan bahwa jika dua berkas sinar-X yang paralel mengenai bidang-bidang kristal yang sama dengan jarak antar bidang (d), maka perbedaan jarak yang ditempuh oleh kedua sinar tersebut berbanding langsung dengan panjang gelombang.



Gambar 8. Skematik berkas sinar-X yang memantul pada bidang kristal mengikuti hukum bragg : $n\lambda = 2 d_{hkl} \sin\theta$

Kegunaan metode difraksi sinar-X dalam analisis kimia adalah untuk mengidentifikasi kristal, penentuan kemurnian hasil sintesis dan deteksi senyawa baru.

3.7.2. Penggunaan Metode Analisis Pengaktifan Neutron (APN) pada Analisis Lempung

Analisis Pengaktifan Neutron (APN) atau *Neutron Activation Analysis* (NAA), merupakan analisis unsur yang didasarkan pada pengukuran aktivitas imbas yang terbentuk bila sampel disinari neutron dalam reaktor ini. Berdasarkan aktivitas imbas dinyatakan dalam persamaan 1 (Susetyo, 1988).

$$A_t = A_0 e^{-0,693 t/T} \dots\dots\dots(1)$$

Dimana,

A_t = aktivitas imbas pada saat pengukuran (cacah/detik)

A_0 = aktivitas imbas nuklida radioaktif saat iradiasi (cacah/detik)

T = waktu paro nuklida hasil iradiasi (detik)

t = waktu diradiasi (detik)

Analisis pengaktifan neutron memiliki keunggulan yang sangat menonjol, yaitu teknik ini dapat digunakan untuk analisis unsur dalam kadar yang sangat rendah, selektivitas tinggi dan kebebasan terhadap kontaminan laboratorium (Susetyo, 1988).

Sampel yang diradiasi menghasilkan sinar gamma dan dengan adanya *detector* akan menghasilkan signal pulsa yang tingginya berkesesuaian dengan tenaga sinar gamma yang mengenai *detector*. Pulsa-pulsa yang diperoleh, kemudian diproses secara elektronik dalam serangkaian alat *spectrometer gamma*. Pulsa-pulsa tersebut akan dipilah-pilah sesuai dengan tingginya. Pulsa dengan tinggi tertentu akan dicatat cacahnya dalam salur (*channel*) dengan nomor salur tertentu dan hasil pencacahan akan terlihat pada layar penganalisis salur (Susetyo, 1988).

3.7.3. Analisis dengan metode BET

Analisis ini dilakukan untuk mengetahui luas permukaan spesifik dan distribusi pori montmorillonit.

Persamaan adsorpsi yang sering digunakan untuk menghitung adsorpsi permukaan padatan adalah persamaan yang diturunkan oleh Brunauer, Emmett dan Teller (BET), dapat ditulis dalam persamaan 3 sebagai berikut (Lowell dan Shields, 1984):

$$\frac{1}{W[(P_0/P)-1]} = \frac{1}{W_m C} + \frac{C-1}{W_m C} (P/P_0) \dots \dots \dots 3$$

- Dimana :
- W = berat gas yang teradsorpsi pada tekanan relatif P/P₀ (g)
 - W_m = berat gas yang teradsorpsi pada lapisan tunggal (g)
 - C = konstanta BET
 - P₀ = tekanan uap jenuh adsorpsi (mmHg)
 - P = tekanan gas (mmHg)

Asumsi menurut teori BET bahwa permukaan padatan tidak akan tertutup secara sempurna selama tekanan uap jenuh (P₀) belum tercapai. Alat yang digunakan untuk menentukan besar luas permukaan spesifik dan volume total pori lempung terpillar adalah *Gas Sorption Analysis* yang didasarkan pada persamaan BET (Baksh dkk., 1992; Huston dkk., 1998; Ocelli., 2000).

3.7.4. Analisis Menggunakan Spektrofotometri UV – Vis

Spektrofotometri adalah salah satu cabang analisis instrumental yang membahas segala sesuatu tentang interaksi sinar dan molekul. Analisis spektrofotometri adalah suatu metode analisis kimia berdasarkan pengukuran seberapa banyak energi radiasi yang diabsorpsi oleh suatu zat sebagai fungsi panjang

gelombang. Panjang gelombang untuk sinar UV adalah 190 – 380 nm dan sinar tampak adalah 380 – 780 nm.

Hukum Lambert menyatakan bahwa proporsi berkas cahaya datang yang diserap oleh suatu bahan atau medium tidak bergantung pada intensitas cahaya yang datang/masuk. Hukum Lambert ini tentunya hanya berlaku jika di dalam bahan atau medium tersebut tidak ada reaksi kimia ataupun proses fisis yang dapat dipicu atau diimbis oleh berkas cahaya yang datang. Dalam hal ini intensitas cahaya yang keluar setelah melewati bahan atau medium tersebut ditulis dalam rumus sebagai berikut:

$$I = T \xi I_0$$

Jika transmisi dinyatakan dalam prosentase maka:

$$\% T = (I/I_0) \xi 100$$

Hukum Beer menyatakan bahwa absorbansi cahaya berbanding lurus dengan konsentrasi dan ketebalan bahan atau medium, ditulis dalam rumus sebagai berikut:

$$A = \epsilon c l$$

Kombinasi dari kedua hukum tersebut (Hukum Beer – Lambert) dapat ditulis sebagai berikut:

$$\% T = (I/I_0) \xi 100 = \exp(-\epsilon c l), \text{ atau}$$

$$A = \log(I_0/I) = \epsilon c l$$

Dimana:

A = Absorbansi

I = Intensitas berkas cahaya keluar

I₀ = Intensitas berkas cahaya yang masuk/datang

ϵ = Molar absorpsifitas untuk panjang gelombang tertentu

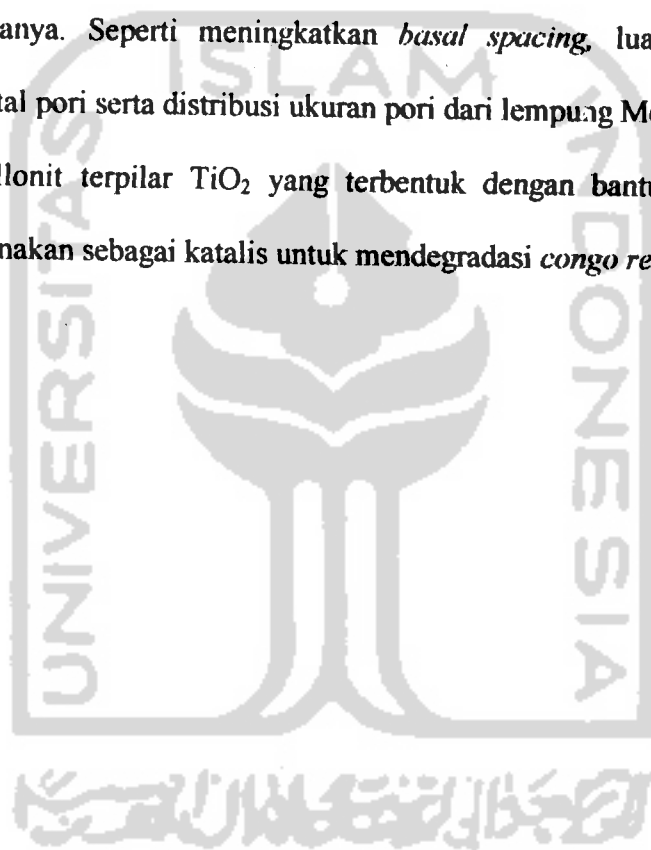
c = konsentrasi

l = Panjang/ketebalan dari bahan atau medium yang dilewati cahaya

3.8 Hipotesis

Pilarisasi Montmorillonit dengan agen pemilar TiO_2 akan menghasilkan lempung terpillar dengan stabilitas termal tinggi serta dapat digunakan sebagai bahan pengemban katalis titanium dioksida. Berdasarkan pemikiran tersebut, dapat dibuat hipotesis sebagai berikut:

1. Pemilaran antarlapis silikat lempung Montmorillonit dapat mengubah sifat fisikokimianya. Seperti meningkatkan *basal spacing*, luas permukaan, volume total pori serta distribusi ukuran pori dari lempung Montmorillonit.
2. Montmorillonit terpillar TiO_2 yang terbentuk dengan bantuan sinar UV dapat digunakan sebagai katalis untuk mendegradasi *congo red*.



BAB IV

METODOLOGI PENELITIAN

4.1 Bahan dan Alat

Bahan: Lempung montmorillonit yang dibeli dari PT. Tunas Inti Makmur, Semarang. *Congo Red* (Merck), Air bebas ion (*deionized water*), Montmorillonit terpolimerisasi TiO₂.

Alat-alat: alat-alat gelas, termometer, pengayak 100 dan 250 *mesh*, lumpang porselin dan penggerus, pengaduk, *oven, furnace (thermolyne-Type-21100 Tube-furnace)*, pengaduk magnet, kertas saring Whatman 42, *pH meter* merek Digital Titrator, timbangan analit, (Mettler-AT 200), *hotplate*, Spektrofotometer sinar-X Philips model PW 3710 BASED, *Gas Sorption Analyzer NOVA 1000 (P3TM, BATAN Yogyakarta)*, Spektrometer Gamma jenis 92x Spectrum master, Spektrofotometer *UV-Vis Milton Roy Spectronic 3000*.

4.2 Prosedur Penelitian

4.2.1 Preparasi Montmorillonit Alam

Seratus gram lempung montmorillonit alam jenis natrium montmorillonit digerus sampai halus sehingga lolos penyaringan 250 *mesh*. Montmorillonit halus tersebut kemudian dicuci dengan 2 L aqua bebas ion, diaduk selama 24 jam, kemudian disaring dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 110° - 120° C. setelah kering, montmorillonit digerus dan diayak menggunakan ayakan 250 *mesh*. Hasil yang diperoleh kemudian dianalisis dengan XRD, *gas sorption analyzer* dan Spektrometer gamma untuk mempelajari kandungan titan (Ti) dalam montmorillonit alam.



4.2.2 Sintesis TiO₂ montmorillonit

Hasil dari sintesis TiO₂ sudah tersedia, sehingga proses ini tidak dilakukan. Namun sebagai pengetahuan, proses sintesis TiO₂ montmorillonit adalah sebagai berikut:

Sebelum montmorillonit terpillar disintesis, maka terlebih dahulu dibuat larutan oligomer sebagai agen pemilar (*Pillaring Agent*). Larutan ini dibuat dengan menambahkan 20 mL TiCl₄ 9,01 M sedikit demi sedikit ke dalam 4 mL HCl 6,0 M. Endapan yang terbentuk kemudian diencerkan sampai volume 220 mL sehingga terbentuk larutan kompleks Ti berwarna bening dengan konsentrasi Ti akhir sekitar 0,82M. Larutan dibiarkan (*aged*) minimal 8 jam pada temperatur kamar sebelum digunakan (Long dan Yang, 1999).

Untuk membuat TiO₂ montmorillonit, maka 18 gram montmorillonit didispersikan ke dalam 1320 mL aquades sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 5 jam. Tahap selanjutnya adalah mencampurkan agen pemilar dengan suspensi montmorillonit dengan perbandingan 10 mmol Ti per gram lempung. Campuran yang terbentuk selanjutnya diaduk dengan kuat selama 18 jam. Hasil yang diperoleh kemudian dipisahkan dengan penyaring dan dicuci beberapa kali dengan air bebas ion sampai terbebas dari ion klorida. Pencucian dihentikan jika filtrat diuji dengan larutan AgNO₃ tidak membentuk endapan putih dari AgCl. Lempung montmorillonit yang telah terinterkalasi kompleks Ti dikeringkan dalam oven pada temperatur 110° – 120°C. Setelah kering, digerus sampai halus kemudian diayak menggunakan ayakan ukuran 270 mesh, selanjutnya dikalsinasi pada temperatur 350°C selama 12 jam (Baksh dkk., 1992; Yang dkk., 1992; Long dan Yang, 1999). Hasil kemudian dianalisis dengan XRD, *gas sorption analyzer* dan *spectrometer gamma* untuk mempelajari kandungan Ti dalam lempung terpillar.

4.2.2 Sintesis TiO₂ montmorillonit

Hasil dari sintesis TiO₂ sudah tersedia, sehingga proses ini tidak dilakukan. Namun sebagai pengetahuan, proses sintesis TiO₂ montmorillonit adalah sebagai berikut:

Sebelum montmorillonit terpillar disintesis, maka terlebih dahulu dibuat larutan oligomer sebagai agen pemilar (*Pillaring Agent*). Larutan ini dibuat dengan menambahkan 20 mL TiCl₄ 9,01 M sedikit demi sedikit ke dalam 4 mL HCl 6,0 M. endapan yang terbentuk kemudian diencerkan sampai volume 220 mL sehingga terbentuk larutan kompleks Ti berwarna bening dengan konsentrasi Ti akhir sekitar 0,82M. larutan dibiarkan (*aged*) minimal 8 jam pada temperatur kamar sebelum digunakan (Long dan Yang, 1999).

Untuk membuat TiO₂ montmorillonit, maka 18 gram montmorillonit didispersikan ke dalam 1320 mL aquades sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 5 jam. Tahap selanjutnya adalah mencampurkan agen pemilar dengan suspensi montmorillonit dengan perbandingan 10 mmol Ti per gram lempung. Campuran yang terbentuk selanjutnya diaduk dengan kuat selama 18 jam. Hasil yang diperoleh kemudian dipisahkan dengan penyaring dan dicuci beberapa kali dengan air bebas ion sampai terbebas dari ion klorida. Pencucian dihentikan jika filtrat diuji dengan larutan AgNO₃ tidak membentuk endapan putih dari AgCl. Lempung montmorillonit yang telah terinterkalasi kompleks Ti dikeringkan dalam oven pada temperatur 110° - 120°C. setelah kering, digerus sampai halus kemudian diayak menggunakan ayakan ukuran 270 mesh, selanjutnya dikalsinasi pada temperatur 350°C selama 12 jam (Baksh dkk., 1992; Yang dkk., 1992; Long dan Yang, 1999). Hasil kemudian dianalisis dengan XRD, *gas sorption analyzer* dan *spectrometer gamma* untuk mempelajari kandungan Ti dalam lempung terpillar.

4.2.3 Fotodegradasi Congo Red Menggunakan TiO₂-montmorillonit Sebagai Fotokatalis

Sembilan gelas beker 50 mL masing-masing diisi dengan 25 mL larutan *congo red* (CR) dengan konsentrasi 10⁻⁴ M. Ke dalam tujuh gelas tersebut dimasukkan 50 mg montmorillonit terpillar TiO₂ sehingga membentuk suspensi. Tujuh dari sembilan gelas tersebut dibungkus dengan plastik hitam sebelum diekspos sinar UV masing-masing selama 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70 menit (sampel berturut-turut diberi kode C₁₀, C₂₀, C₃₀, C₄₀, C₅₀, C₆₀, C₇₀) sedangkan suspensi sisanya yaitu TiO₂-montmorillonit dalam *congo red* dibiarkan ditempat gelap sebagai pengontrol untuk menghitung hilangnya adsorpsi *congo red* pada TiO₂-montmorillonit.

Suspensi disaring dengan penyaring vakum menggunakan kertas saring Whatman 42. larutan *congo red* yang dibuat kemudian di *scanning* panjang gelombang maksimum. Filtrat kemudian dianalisis absorbansinya dengan spektrofotometer UV-Vis pada gelombang maksimum. Hasil pembacaan absorbansi dikonversi ke konsentrasi dengan bantuan larutan standar *congo red*. Untuk lebih jelasnya mengenai perlakuan TiO₂-montmorillonit pada proses degradasi *congo red* akan digambar pada tabel 1.

Tabel 1. Perlakuan TiO₂-montmorillonit pada degradasi Congo Red (CR).

No	Kondisi	Perlakuan
1	Larutan CR merah	Dibungkus plastik hitam
2	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Dibungkus plastik hitam
3	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 10 menit
4	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 20 menit
5	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 30 menit
6	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 40 menit
7	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 50 menit
8	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 60 menit
9	Lart. CR + TiO ₂ -montmorilonit	Disinari UV selama 70 menit

BAB V

HASIL DAN PEMBAHASAN

5.1 Preparasi Montmorillonit

Preparasi montmorillonit dilakukan dengan mencuci lempung alam tersebut menggunakan air bebas ion (*demineralized aqua*). Pencucian ini dilakukan untuk menghilangkan pengotor-pengotor yang ada pada permukaan lempung karena dalam bentuk bentonit terdapat berbagai macam jenis mineral. Untuk mengeringkan kembali lempung tersebut dipanaskan dalam *oven* hingga molekul air bebas yang terdapat dalam ruang antarlapis dapat teruapkan. Lempung montmorillonit yang dipakai ini tidak sepenuhnya merupakan bahan inang homo-ionik, di dalam antarlapisnya terdapat pula ion-ion logam lain misalnya natrium, besi dan lainnya. Hasil analisis dengan metode APN mendukung data tersebut dimana konsentrasi yang bervariasi dari logam lain ditunjukkan pada tabel 3.

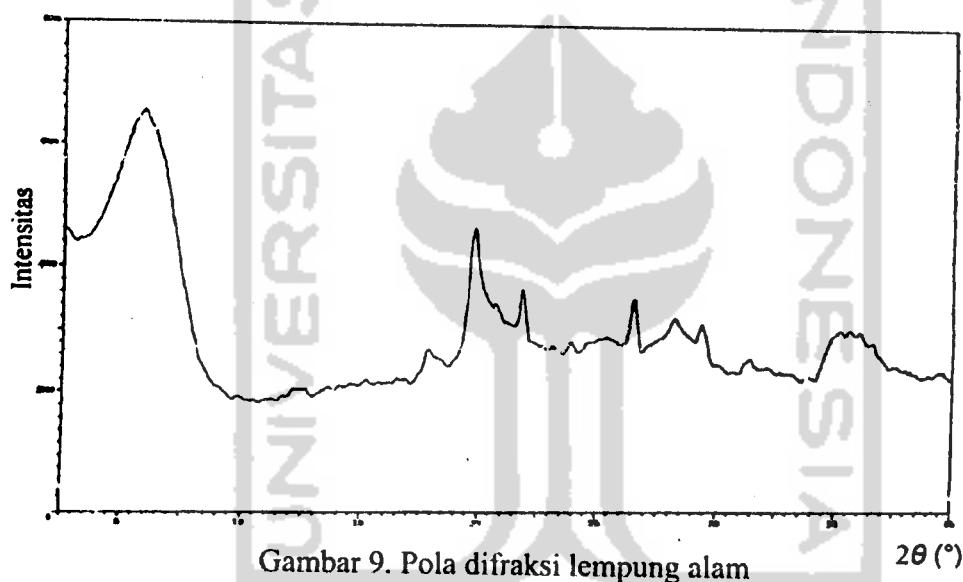
Tabel 3. Kandungan unsur yang terdapat dalam montmorillonit alam dengan metode APN (Nurmantias, 2002)

No	Unsur	Kandungan (% b/b)
1	Na	2,23
2	Ca	1,97
3	K	0,08
4	Fe	3,58
5	Mg	1,79

Hasil analisis terhadap montmorillonit alam dengan menggunakan XRD menghasilkan difaktogram seperti pada gambar 9. Dari difaktogram XRD tersebut menunjukkan bahwa kristalinitas montmorillonit cukup homogen ditandai dengan rampingnya refleksi intensitas difraksi. Hal tersebut kemungkinan terjadi proses

kalsinasi yang menyebabkan molekul air bebas pada ruang antar lapis mengalami penguapan sebagai kation terhidrat bisa tersusun lebih teratur.

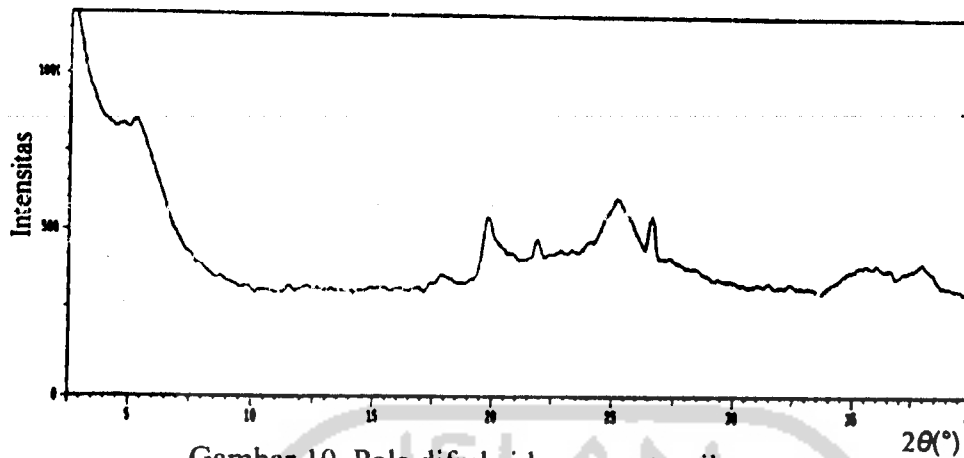
Dari difaktogram dibawah terlihat bahwa sample mempunyai puncak pada $2\theta = 5,82^\circ$ ($d = 14,898\text{\AA}$) dan $2\theta = 19,88^\circ$ ($d = 4,46\text{\AA}$) yang merupakan daerah karakteristik mineral montmorillonit. Pada $2\theta = 5,82^\circ$ menunjukkan intensitas yang paling besar, berarti merupakan mineral penyusun utama montmorillonit. Hal ini menunjukkan bahwa lempung alam yang diteliti sebagian besar tersusun atas montmorillonit. Puncak pada $2\theta = 6,96^\circ$ ($d = 12,8\text{\AA}$) menunjukkan adanya SiO_2 .



Gambar 9. Pola difraksi lempung alam

5.2. Sintesis Montmorillonit Terpillar TiO_2

Montmorillonit terpillar TiO_2 diperoleh dengan reaksi pertukaran kation Na^+ pada antarlapis lempung dengan Ti ion Keggin. Kation ini memiliki ukuran ion yang lebih besar daripada kation Na^+ sehingga dari pertukaran ini diperoleh bahan yang memiliki struktur lapis dengan jarak antarlapis (*basal spacing*) yang lebih besar dari montmorillonit alam. Reaksi pertukaran katio Na^+ dengan Ti ion Keggin di dalam mineral montmorillonit dapat terjadi karena kation Na^+ yang berada diantara lapis silika lempung tidak terikat kuat sehingga mudah digeser atau ditukar oleh Ti ion Keggin.



Gambar 10. Pola difraksi lempung terpillar

Hasil analisis XRD terlihat bahwa sampel mempunyai puncak pada $2\theta = 5,49^\circ$ (tidak terdeteksi). Hal ini menunjukkan bahwa hasil pemiliran montmorillonit dengan TiO_2 menyebabkan pergeseran *basal spacing* ke kiri. Hasil ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Long dan Yang (1999). Proses interkalasi menyebabkan refleksi d_{001} menghilang dan intensitas dari refleksi yang lain menurun. Hal ini sesuai juga yang dikatakan oleh Cannizares dkk (1999). Ketinggian pilar yang terbentuk dapat ditentukan dengan menghitung selisih antar *basal spacing* d_{001} montmorillonit terpillar TiO_2 dengan ketebalan lapisan silika $9,6^\circ$ (Yang dkk., 1992). Dalam penelitian didapatkan tinggi pilar lebih besar dari $6,46\text{\AA}$ ($\Delta d_{001} = 16,06 - 9,6\text{\AA}$).

Walaupun demikian, pola refleksi pada difaktogram lempung terpillar TiO_2 tidak ramping seperti halnya pada lempung alam. Hal ini mungkin akibat dari ketidakteraturan atom-atom dalam ruang antar lapis walaupun telah terbentuk pilar. Perbedaan tinggi pilar, perbedaan jarak antar pilar dan perbedaan tebal pilar juga dimungkinkan sebagai alasan tidak rampingnya pola refleksi pada difaktogram lempung terpillar TiO_2 .

Terbentuknya pilar TiO_2 pada antar lapis montmorillonit dapat diketahui dari hasil analisis APN yang dilakukan pada montmorillonit alam dan montmorillonit terpillar yang ditunjukkan pada tabel 4.:

Tabel 4. Hasil pengukuran kandungan Ti dengan metode APN dari montmorillonit alam dan montmorillonit terpillar TiO_2 .

No	Nama sampel	Kandungan Ti (% b/b)
1	Montmorillonit alam	0,58
2	Montmorillonit terpillar TiO_2	26,87

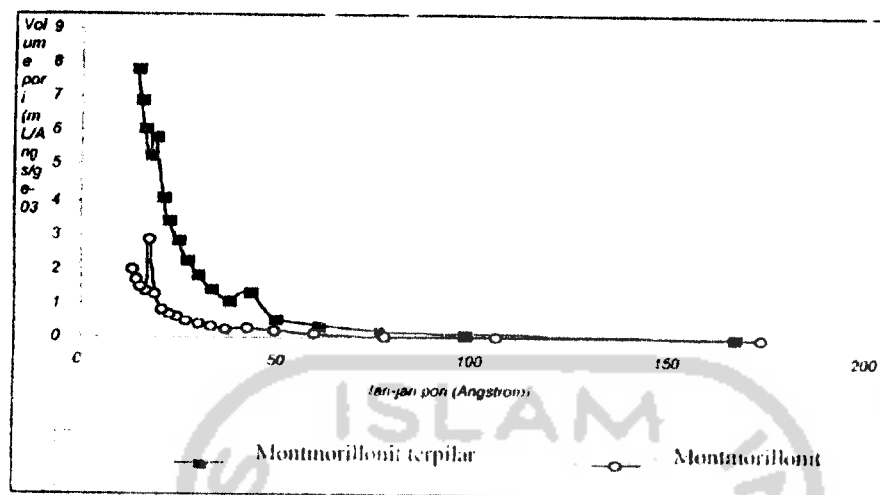
Dari hasil analisis yang ditunjukkan pada tabel 4 di atas, terjadi peningkatan jumlah Ti dalam bentuk TiO_2 pada montmorillonit yang sudah terpillar, dari 0,58 % (b/b) pada montmorillonit alam menjadi 26,87 % (b/b) pada montmorillonit terpillar TiO_2 . Kenaikan ini wajar karena TiO_2 diinterkalasikan ke dalam system antarlapis montmorillonit. Hal ini didukung oleh data pengukuran terhadap luas permukaan pori dimana terjadi peningkatan yang sangat signifikan pada luas permukaan spesifik lempung yang telah terpillar TiO_2 yang telah ditunjukkan pada tabel 5.

Tabel 5. Data luas permukaan spesifik dan total volume pori dari montmorillonit alam dan montmorillonit terpillar TiO_2 .

No	Nama sampel	Luas permukaan spesifik (m^2/g)	Volume total pori ($\times 10^{-3} \text{ mL/g}$)
1	Montmorillonit alam	69,71	50,70
2	Montmorillonit terpillar TiO_2	208,12	167,87

Dari hasil analisis diatas menunjukkan bahwa pilarisasi montmorillonit dengan TiO_2 telah berhasil, ini ditandai dengan terjadinya kenaikan yang signifikan dari kedua parameter yang ada, yakni luas permukaan yang spesifik maupun total volume pori. Pada gambar 11. menunjukkan bahwa pilarisasi juga mengakibatkan pergeseran pori

montmorillonit dari mikropori ke daerah mesopori ini dapat dilihat dari diameter pori bahan yang berada di antara 20 – 500 nm.

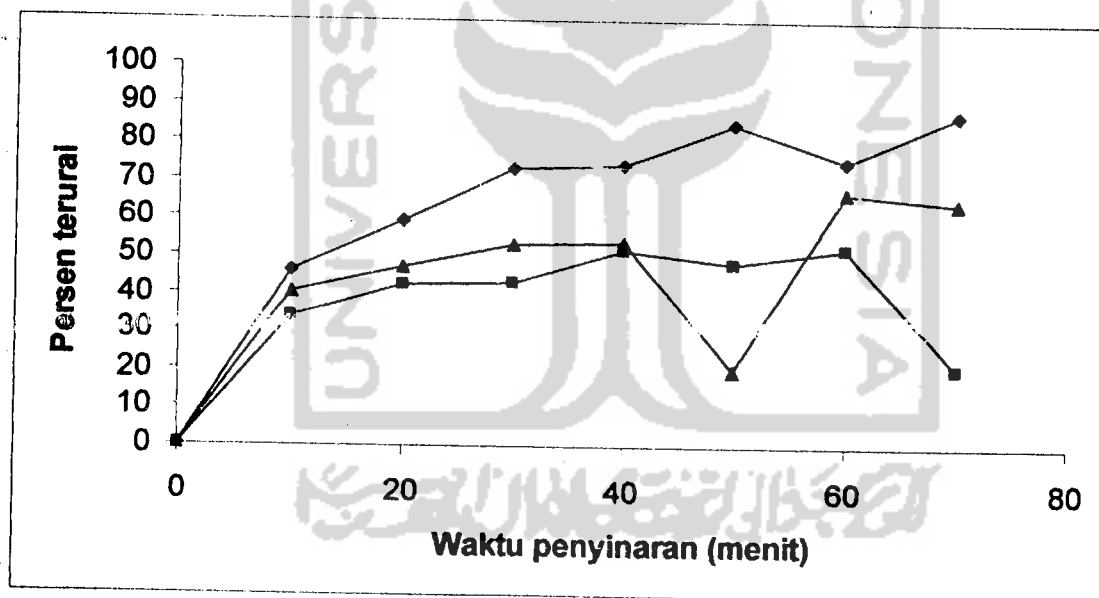


Gambar 11. Distribusi ukuran pori dari montmorillonit alam dan montmorillonit terpelar TiO_2

5.3. Fotodegradasi *congo red* menggunakan TiO_2 -montmorillonit sebagai katalis

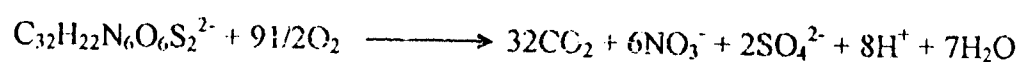
Fotodegradasi *congo red* dengan menggunakan montmorillonit terpelar TiO_2 sebagai katalis dilakukan dengan bantuan sinar UV dengan panjang gelombang 350 nm. Dalam hal ini, montmorillonit digunakan sebagai inang dari bahan semi konduktor titanium oksida yang memiliki kemampuan untuk mendegradasi senyawa-senyawa organik. Reaksi yang terjadi pada degradasi *congo red* adalah reaksi redoks dimana terjadi pelepasan dan penangkapan elektron yang diakibatkan oleh energi foton $h\nu$. Dalam penelitian ini telah dipelajari pengaruh waktu penyinaran terhadap pengurangan *congo red*. Degradasi *congo red* dengan menggunakan montmorillonit terpelar TiO_2 dilakukan dengan beberapa variasi waktu yaitu 10, 20, 30, 40, 50, 60, dan 70 menit dengan bantuan sinar UV dan tanpa sinar UV.

Dari hasil analisis dengan spektrofotometer UV-VIS pada panjang gelombang 499 nm (hasil penentuan panjang gelombang maksimum) menunjukkan terjadinya penurunan konsentrasi *congo red* setelah ditambah montmorillonit terpilas TiO_2 disertai penyinaran dengan sinar UV dan tanpa sinar UV. Semakin lama waktu penyinaran, maka pengurangan jumlah *congo red* semakin besar. Hal ini disebabkan karena semakin lama kontak antara fotokatalis dengan *congo red* dan semakin lama waktu penyinaran maka semakin banyak foton yang terserap oleh fotokatalis yang selanjutnya energi foton yang diserap tersebut digunakan untuk proses transfer muatan antar muka fotokatalis dan substrat *congo red* ditunjukkan berdasarkan grafik hasil pengamatan pada gambar dibawah ini.



Gambar 12. Pengaruh lama penyinaran dalam pengurangan jumlah *Congo red* untuk Fotodegradasi dengan katalis montmorillonit terpilas TiO_2 dan montmorillonit alam.

Sebagian besar degradasi senyawa organik mengikuti reaksi tingkat satu. (Modestov dkk., 1997). Reaksi fotodegradasi *congo red* dapat dituliskan sebagai berikut:



Degradasi *congo red* diamati dengan mengukur konsentrasi *congo red* sisa setelah terjadi reaksi fotokatalistik dengan menggunakan spektrofotometer UV- Vis. Dari data konsentrasi sisa *congo red* setelah penyinaran dengan penambahan montmorillonit alam dan montmorillonit terpillar TiO_2 maka dapat dibuat kurva $\ln C/C_0$ sebagai fungsi waktu penyinaran ultra violet untuk mengetahui konstanta laju reaksi (disajikan pada lampiran 7 dan 8).

Berdasarkan pengolahan data di atas, dapat diketahui bahwa reaksi cenderung berjalan mengikuti orde 1, sehingga dari data tersebut dapat ditentukan konstanta laju reaksi (k) yang diperoleh dari perhitungan slope = $-k$. Data di atas memberikan hasil slope sebesar $0.00609 \text{ menit}^{-1}$, bila dikonversi menjadi detik berarti konstanta laju reaksinya $0,3654 \text{ detik}^{-1}$ dengan koefisien korelasi $-0,912536$. Hasil tersebut berbeda dengan hasil penelitian yang telah dilakukan Nogucira dan Jardin (1993) yang memperoleh $k=0,078$. Perbedaan hasil ini disebabkan perbedaan jumlah katalis yang digunakan, kondisi lingkungan ketika melakukan penelitian serta luas permukaan katalis yang digunakan sehingga menyebabkan perbedaan laju reaksi.

BAB VI

KESIMPULAN DAN SARAN

6.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan analisis, maka diperoleh kesimpulan sebagai berikut:

1. Pemiliran antarlapis silikat montmorillonit menggunakan TiO_2 telah meningkatkan luas permukaan spesifik sebesar $208,12 \text{ m}^2/\text{g}$, volume total pori sebesar $167,87 \times 10^{-3} \text{ mL/g}$. pemiliran dengan TiO_2 juga menyebabkan peningkatan *basal spacing* (d_{001}) montmorillonit sebesar $\geq 6,46 \text{ \AA}$ dan kandungan titan yang terukur adalah $26,87 \%$ (b/b).
2. Kinetika reaksi *congo red* mengikuti orde 1 dengan konstanta laju reaksi $0,00609 \text{ menit}^{-1}$.

6.2. Saran

Mengingat masih banyaknya lempung di Indonesia maka diperlukan penelitian lebih lanjut tentang lempung agar dapat dimanfaatkan secara optimal dalam mengatasi pencemaran lingkungan.

DAFTAR PUSTAKA

- Baksh, M.S., Kikkides, E.D., dan Yang, R.T., 1992, Characterization by Physisorption of a New Class of Microporous Adsorbents: Pillared Clay, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 31, 2181-2189.
- Cheng, L.S., dan Yang, R.T., 1995, A New Class of Non-Zeolite Sorbent for Air Separation: Lithium Ion Exchange Pillared Clays, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 24, 2021-2028.
- Constantino, U., 1991, *Ion Exchange and Intercalation as Tools to Obtain Pillared Layered Structures*, Post Conference of Ion Exchange, Tokyo.
- Cotton, F.A., Wilkinson, G., Murillo, C.A., dan Bochmann, M., 1999, *Advanced Inorganic Chemistry*, 6th ed., John Willey & Sons Inc., Kanada.
- Drljaca, A., Spiccia, L., Anderson, J.R., dan Turney, T.W., 1997, Intercalation of Montmorillonite Clay with Individual Oligomeric Rhodium (III) Aqua Cation, *Inorg. Chem. Acta.*, 254, 219-224
- Ekimav, A. I., Efros, A.I.L. dan Anuchenko, A.A., 1985, Quantum Size Effect in Semiconductor Microcrystals; *Solid State Communications*, 5611, 921-1524.
- Hoffman, M.R., Martin, S.T., Choi, W., dan Bahnemann, D.W., 1995, *Environmental Applications of Semiconductor Photocatalysis*, *Chem. Rev.*, 95, 69-96.
- Leonard, V.I., 1995, *Materials Chemistry: an Emerging Disipline*, ACS, Washington.
- Long, R.Q., dan Yang, R.T., 1999, *Selective Catalytic Reduction of Nitrogen Oxides by Ammonia over Fe³⁺ Exchange TiO₂-Pillared Clay Catalyst*, *J. Catal.*, 186, 254-268.
- Manku, G.S., 1984, *Inorganic Chemistry*, Tata McGraw-Hill Pub. Co. Ltd., New Delhi.
- Modestov, A., Glezer, V., Marjasin, I., and Lev, O., 1997, *Photocatalytic Degradation of Chlorinated Phenoxyacetic Acids by A New Buoyant Titania-Exfoliated Graphite Composite Photocatalyst*, *J. Phys. Chem. B*, 101, 4623-4629.
- Mokaya, R. dan Jones W., 1995. *Pillared Clays and Pillared Acid-Activated Clays A Comparative of Physical, Acidic and Catalytic Properties*, *Journal of Catalysis* 153, 76-78.
- Murtado, H., 1994, *Kajian Reaksi Pertukaran Ion Kalsium oleh Ion Natrium pada Bentonit Alam (Bentonit-Ca)*, Skripsi, FMIPA UGM, Yogyakarta.
- Nogueira, R.F.P., dan Jurdim, W.F., 1993, Photodegradation of Methylene Blue Using Solar Light and Semiconductor (TiO₂), *J. Chem. Ed.*, 70, 10, 861-862.

- Ogawa, M., 1992, *Preparation of Clay-Organic Intercalation Compounds by Solid-Solid Reactions and Their Application to Photofunctional Material*, Dissertation, Waseda University, Tokya.
- Pinnavaia, T.J., 1983, Intercalated Clay Catalyst, *Science*, 220, 4595, 365-371.
- Sampath, S., Uchida, H., dan Yoneyama, H., 1994, Photocatalytic Degradation of Gaseous Pyridine over Zeolite-Supported Titanium Dioxide, *J. Phys. Chem.*, 189-194.
- Simpen, I. N., 2001, *Preparasi dan Karakterisasi Lempung Montmorillonit Teraktivasi Asam TerpillarTiO₂*, Thesis S-2, UGM, Yogyakarta.
- Stecher, P. G., Windholz, M., Leahy, D. S., Bolton, D. M., Eaton, L. G., 1968, *The Merck Index*, Eight Edition, Merck & Co. Inc., New York, USA.
- Susetyo, W., 1988, *Spektrometer Gamma dan Penerapannya dalam Analisis Pengaktifan Neutron*, Gajah Mada University Press, Yogyakarta.
- Tan, K. H., 1982, *Dasar-dasar Kimia Tanah*, edisi pertama, Gajah Mada University Press, Yogyakarta.
- Vinodgopal, K., Hotchandani, S., dan Kamat, Prashan, V., 1993, *Electrochemically Assisted Photocatalysis TiO₂ Particulate Film Electrodes for Photocatalytic Degradation of 4-Chloropenol*, *J. Phys. Chem.*, 97, 9040-9044.
- Wijaya, K., 1995, *Interkalasi Senyawa-Senyawa Fotokromik Kedalam Antar Lapis Smektit dan Pemanfaatannya untuk Bahan Penyimpan Data Optik*, Penelitian P4M, UGM, Yogyakarta.
- Xu, Y., and Langford, C. H., 1997, Photoactivity of Titanium Dioxide Supported on MCM 4, Zeolite X, and Zeolite Y, *J. Phys. Chem.*, B. 101, 3115-31121.
- Yanagisawa, T., 1990, *Synthesis of Organic Intercalation Compounds Layered Polysilicate*, Dissertation, Waseda University, Tokyo.
- Yang, R. T., Chem, J. P., Kikkinides, E. S., dan Cheng, L. S., 1992, *Pillared Clay as Superior Catalyst for Selective Catalytic Reduction of NO with NH₃*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 31, 1440-1445.

Lampiran 1 Data kandungan lempung bentonit dari PT. Tunas Inti Makmur,
Semarang



P.T. TUNAS INTI MAKMUR
CHEMICAL INDUSTRY

Chemical Analysis	Na. Bentonite
Component	'A 3'
SiO ₂	61,02%
Al ₂ O ₃	15,21%
Fe ₂ O ₃	4,89%
TiO ₂	0,62%
CaO	2,08%
MgO	1,94%
K ₂ O	0,46%
Na ₂ O	3,45%
LOI	10,31%

Lampiran 2. Data absorbansi dan konsentrasi *congo red* setelah fotodegradasi dengan sinar UV dan dikatalis TiO_2 montmorillonit serta montmorillonit alam.

Waktu (t)	A mont	A Ti-mont	A Ti- mont Dark	C mont (mM)	C Ti-mont UV (mM)	C Ti-mont Dark (mM)
10	0,217	0,256	0,234	$5,409 \times 10^{-3}$	$6,636 \times 10^{-3}$	$5,945 \times 10^{-3}$
20	0,174	0,229	0,213	$4,058 \times 10^{-3}$	$5,787 \times 10^{-3}$	$5,284 \times 10^{-3}$
30	0,907	0,226	0,195	$2,711 \times 10^{-3}$	$5,699 \times 10^{-3}$	$4,718 \times 10^{-3}$
40	0,878	0,190	0,192	$2,619 \times 10^{-3}$	$4,844 \times 10^{-3}$	$4,634 \times 10^{-3}$
50	0,530	0,210	0,299	$1,525 \times 10^{-3}$	$5,189 \times 10^{-3}$	$7,989 \times 10^{-3}$
60	0,124	0,197	0,151	$2,485 \times 10^{-3}$	$4,780 \times 10^{-3}$	$3,334 \times 10^{-3}$
70	0,382	0,298	0,158	$1,059 \times 10^{-3}$	$7,957 \times 10^{-3}$	$3,554 \times 10^{-3}$



Lampiran 3. Data persentase pengurangan *congo red* setelah fotodegradasi dikatalis oleh sinar TiO₂ montmorillonit dan montmorillonit alam serta sinar UV.

Perhitungan persentase dengan rumus:

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

Dengan C_t adalah konsentrasi *congo red* setelah t menit

C₀ konsentrasi awal *congo red* (=0,1 mM)

Persentase pengurangan *congo red* akibat penyinaran UV dikatalis montmorillonit alam.

Waktu (t)	C _t (mM)	% pengurangan
10	0,05409	45,91
20	0,04058	59,42
30	0,02711	72,89
40	0,02619	73,81
50	0,01525	84,75
60	0,02485	75,15
70	0,01059	89,41

Persentase pengurangan *congo red* akibat penyinaran UV dikatalis TiO₂-montmorillonit.

Waktu (t)	C _t (mM)	% pengurangan
10	0,06636	33,64
20	0,05787	42,13
30	0,05699	43,01
40	0,04844	51,56
50	0,05189	48,11
60	0,04780	52,22
70	0,07957	20,43

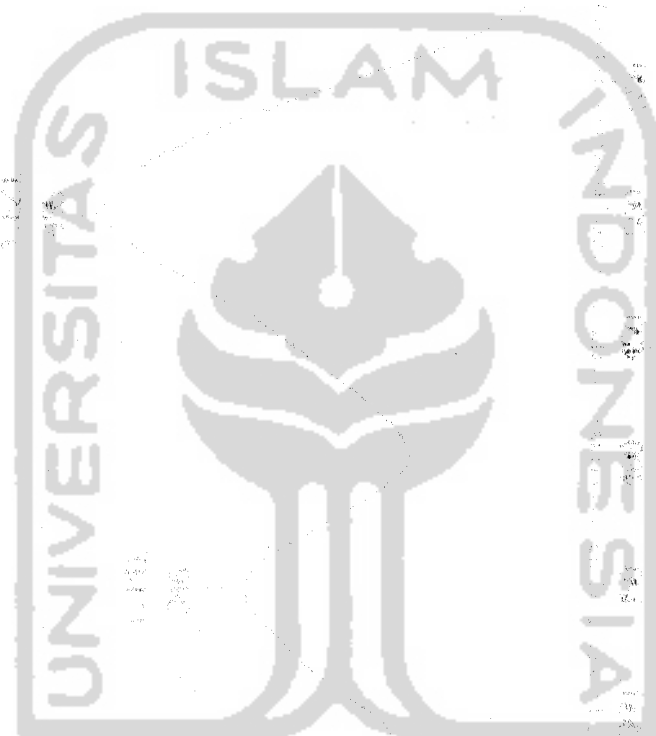
Persentase pengurangan *congo red* akibat dikatalis TiO_2 -montmorillonit.

Waktu (t)	C_t (mM)	% pengurangan
10	0,05945	40,55
20	0,05284	47,16
30	0,04718	52,82
40	0,04634	53,66
50	0,07989	20,11
60	0,03334	66,66
70	0,03554	64,46



Lampiran 4. Amak dari Congo Red

UNIVERSITAS ISLAM INDONESIA



UNIVERSITAS ISLAM INDONESIA

ampiran 5. Difaktogram Sinar-X dari Montmorillonit Alam

Group Name : Standard
 Data Name : Rambat-1
 File Name : Rambat-1.PKR
 Sample Name : NaBentonit
 Comment : NaBentonit

Strongest 3 peaks

peak no.	2Theta (deg)	d (A)	I/Ii	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
5	5.8200	15.17317	100	0.00000	496	0
16	19.8828	4.46186	70	0.74100	349	13912
6	6.9000	12.80047	65	1.12660	324	31291

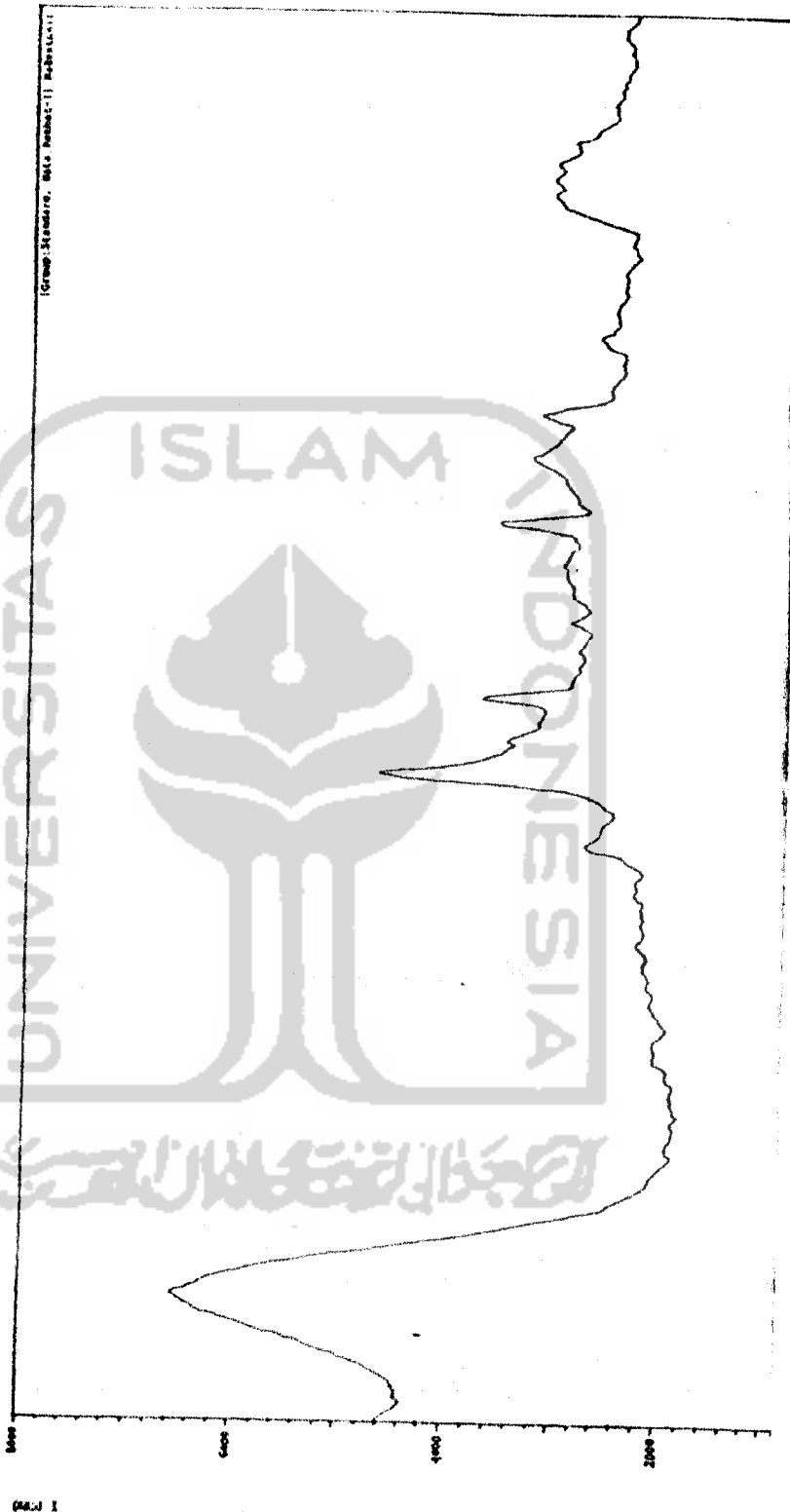
Peak Data List

peak no.	2Theta (deg)	d (A)	I / Ii	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	3.3800	26.11914	5	0.15000	25	526
2	3.8600	22.87217	15	0.60800	74	1932
3	4.4400	19.88558	40	0.92000	196	9085
4	4.9400	17.87393	64	0.00006	315	0
5	5.8200	15.17317	100	0.00000	496	0
6	6.9000	12.80047	65	1.12660	324	3191
7	7.8400	11.26770	15	0.49000	72	2377
8	12.1000	7.30861	4	0.16000	20	204
9	12.4800	7.08691	3	0.42000	16	463
10	15.1816	5.83131	3	0.23670	17	444
11	16.8421	5.25994	3	0.06430	115	153
12	17.4400	5.08094	3	0.22660	17	245
13	17.8000	4.97898	14	0.36000	70	1230
14	18.3200	4.83881	8	0.51000	40	1185
15	19.1200	4.63812	7	0.38660	33	973
16	19.8826	4.46186	70	0.74100	491	3912
17	20.6800	4.29163	29	0.00000	144	0
18	21.2800	4.17196	19	0.00000	93	0
19	21.8560	4.06329	35	0.41210	175	4665
20	22.4000	3.96583	7	0.40000	33	812
21	22.1800	3.90052	5	0.10000	25	187
22	23.2260	3.82662	5	0.25200	24	426
23	23.9425	3.71071	7	0.27500	34	425
24	24.6200	3.61302	6	0.20000	29	749
25	25.0200	3.55616	8	0.00000	40	0
26	25.5000	3.49030	9	0.70000	47	1918
27	26.5692	3.35222	29	0.31040	145	2412
28	27.2000	3.27589	6	0.44000	29	521
29	27.5200	3.23852	9	0.48000	43	637
30	27.6600	3.22245	10	0.00000	48	0
31	28.3200	3.14883	22	1.03340	110	4967
32	28.8800	3.08903	14	0.00000	71	0
33	29.4067	3.03489	23	0.48000	113	3429
34	30.0700	2.96944	3	0.26000	17	401
35	31.3671	2.84954	8	0.38570	41	906
36	32.1700	2.78023	4	0.40400	19	0
37	35.2000	2.54754	24	1.24000	119	5421
38	35.5200	2.52532	24	0.00000	119	0
39	35.9800	2.49408	23	0.00000	113	0
40	36.4600	2.46234	17	0.00000	83	0
41	36.9600	2.43017	9	0.42660	45	2039
42	37.5000	2.39518	6	9.60000	79	0
43	37.9200	2.37083	3	0.00000	17	404

Lampiran 1 Difraktogram Na-montmorillonit yang dipanaskan pada temperatur 100°C

File Name : Standard\Rambat-1
Sample Name : NaBentonit
Date & Time : 04-08-02 12:27:04
Condition Comment : NaBentonit

X-ray Tube : Cu(1.54060 Å) Voltage : 40.0 kV Current : 30.0 mA
Scan Range : 2.5000 <-> 40.0000 deg Step Size : 0.0200 deg
Count Time : 0.24 sec Slit DS : 0.50 deg SS : 1.00 deg RS : 0.30 mm



Lampiran 6. Difaktogram sinar-X Montmorillonit terpillar TiO_2

*** Basic Data Process ***

Data Information

Group Name : Standard
 Data Name : Eko Adi-1
 File Name : Eko Adi-1.PKR
 Sample Name : PILC
 Comment : PILC-100
 Date & Time : 05-11-02 12:36:04

Measurement Condition

X-ray tube

Target : Cu
 Voltage : 40.0 (kV)
 Current : 30.0 (mA)

Slits

Divergence slit : 0.50 (deg)
 Scatter slit : 1.00 (deg)
 Receiving slit : 0.30 (mm)

Scanning

Drive axis : Theta-2Theta
 Scan range : 2.0000 - 40.0000 (deg)
 Scan mode : Continuous Scan
 Scan speed : 5.0000 (deg/min)
 Sampling pitch : 0.0200 (deg)
 Preset time : 0.24 (sec)

Data Process Condition

Smoothing [AUTO]
 Smoothing points : 27
 B.G. Subtraction [AUTO]
 Sampling points : 27
 Repeat times : 30
 Kal-a2 Separate [MANUAL]
 Kal a2 ratio : 50 (%)
 Peak Search [AUTO]
 Differential points : 69
 FWHM threshold : 0.050 (deg)
 Intensity threshold : 30 (per mil)
 FWHM ratio (n-1)/n : 2
 System error Correction [NO]
 Precise peak Correction [NO]

Basic Data Process

Sample Name : Standard
 Sample Name : Eko. Adi-1
 File Name : Eko Adi-1.PKR
 Sample Name : PILC
 Comment :PILC-100

Strongest 3 peaks

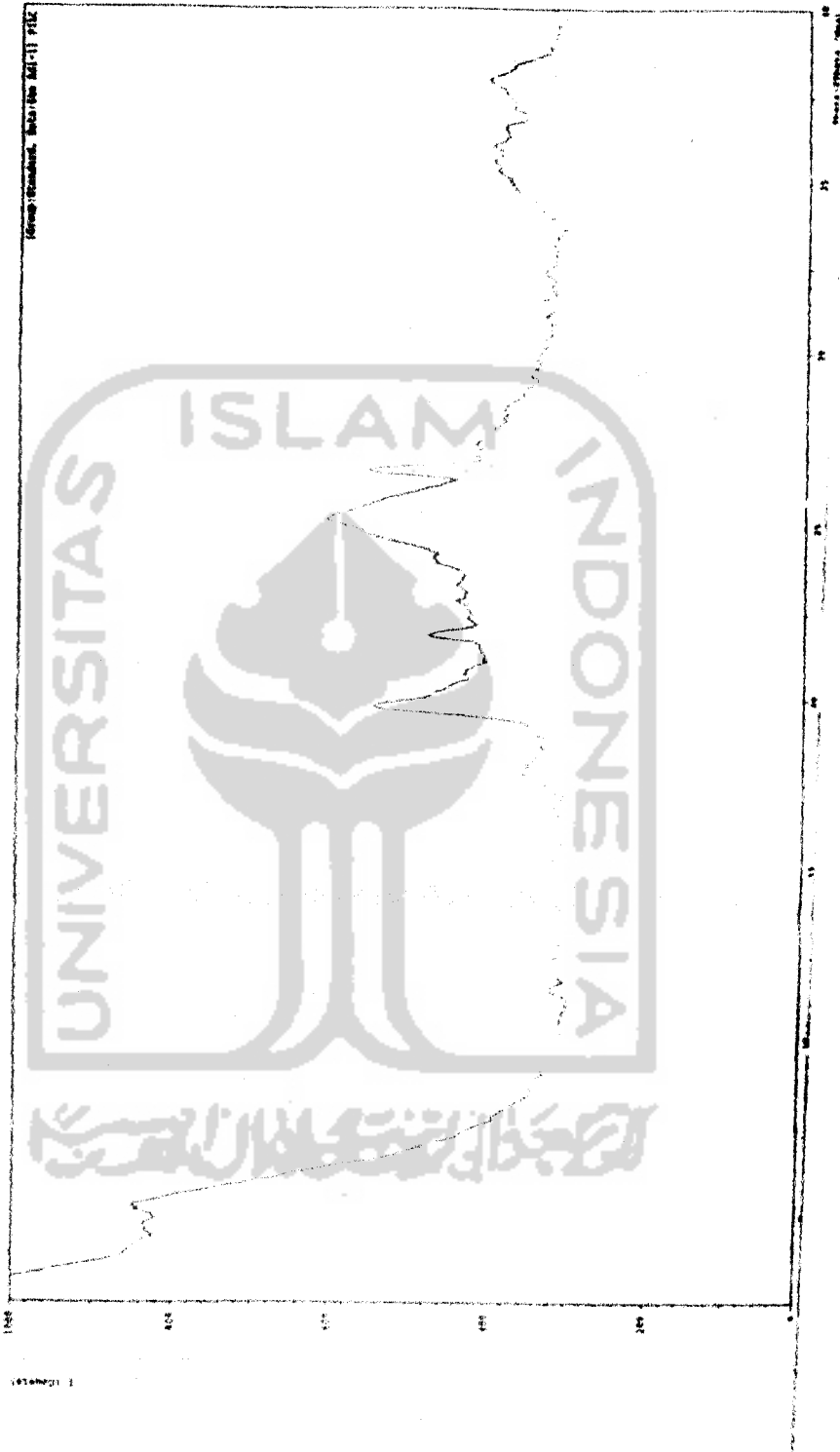
Peak no.	2Theta (deg)	d (A)	I/il	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	13 25.2200	3.52841	100	1.40000	137	9040
2	8 19.9121	4.45536	93	0.68920	128	322*9
3	14 26.5915	3.34946	82	0.32840	112	2343

Peak Data List

Peak no.	2Theta (deg)	d (A)	I/il	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	5.4966	16.06516	74	1.12670	101	6504
2	8.9800	9.83968	4	0.03000	6	23
3	9.7400	9.07354	7	0.10660	9	82
4	9.9000	8.92725	9	0.08000	13	74
5	11.4900	7.69521	12	0.22000	16	296
6	15.3466	5.76898	7	0.06670	10	92
7	17.9364	4.94142	22	0.49290	30	1060
8	19.9121	4.45536	93	0.68920	128	3229
9	20.4200	4.34568	39	1.00000	54	2472
10	21.8761	4.05961	44	0.32330	60	1026
11	22.6550	3.92176	20	0.89000	28	2526
12	24.2600	3.66582	26	0.00000	36	0
13	25.2200	3.52841	100	1.40000	137	9040
14	26.5915	3.34946	82	0.32840	112	2343
15	27.5600	3.23391	11	0.00000	15	0
16	28.4075	3.13933	9	0.34500	13	647
17	30.0550	2.97089	5	0.07000	7	42
18	31.4925	2.83848	9	0.18500	13	190
19	32.3366	2.76629	9	0.24670	12	168
20	35.6225	2.51829	39	2.19500	54	5218
21	37.8400	2.37565	39	1.24000	54	2924.

*** Multi Plot ***

File Name : Standard\Eko Adi-1
Sample Name : PILC
Date & Time : 05-11-02 12:36:04
Condition : Comment : PILC-100
X-ray Tube : Cu(1.54060 Å) Voltage : 40.0 kV Current : 30.0 mA
Scan Range : 2.5000 <-> 40.0000 deg Step Size : 0.0200 deg
Count Time : 0.24 sec Slit DS : 0.50 deg SS : 1.00 deg RS : 0.30 mm



Lampiran 7. Perhitungan *Outlayers* data

Data tidak tepat jika:

$$\frac{|x - \bar{x}|}{d} > 2,5$$

Data ln C_t/C_0 \longrightarrow x

x	$ x - \bar{x} $
0	0,1964
-0,1369	0,0595
-0,1522	0,0442
-0,3148	0,1184
-0,2459	0,0495
-0,3285	0,1321
$\Sigma = -1,1783$	$\Sigma = 0,6001$

$$\bar{x} = \frac{\sum x}{n} = \frac{-1,1783}{6} = -0,1964$$

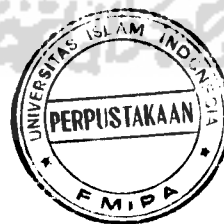
$$d = \frac{\sum |x - \bar{x}|}{n} = \frac{0,6001}{6} = 0,1$$

$$\frac{|x - \bar{x}|}{d} > 2,5$$

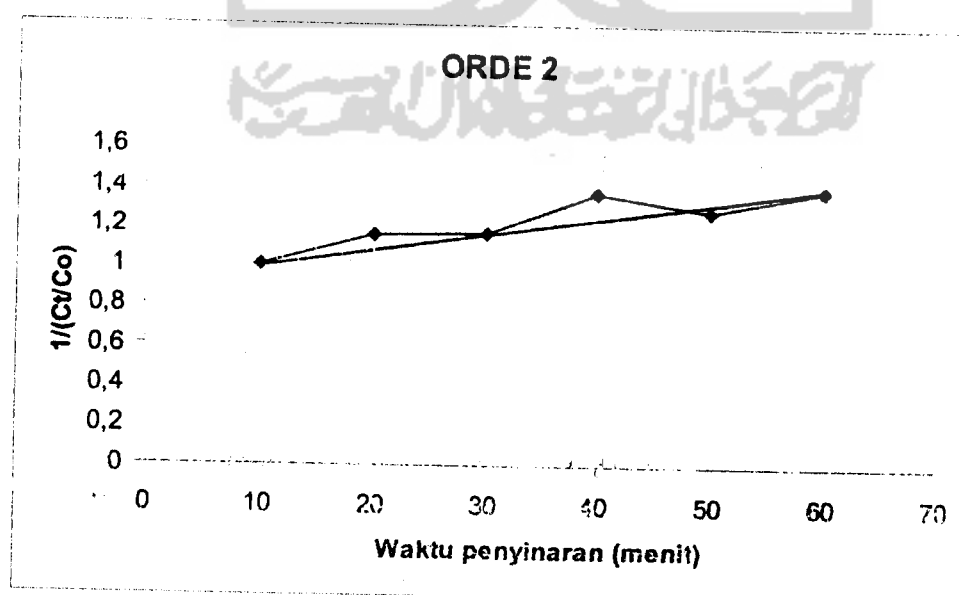
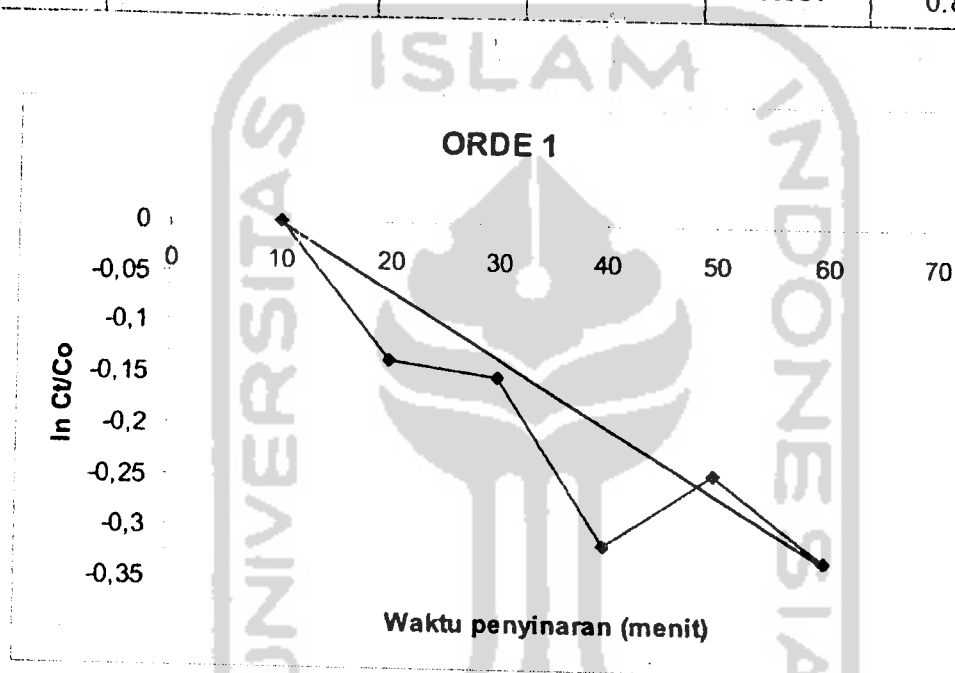
$$\frac{|0,1815 + 0,1964|}{0,1} > 2,5$$

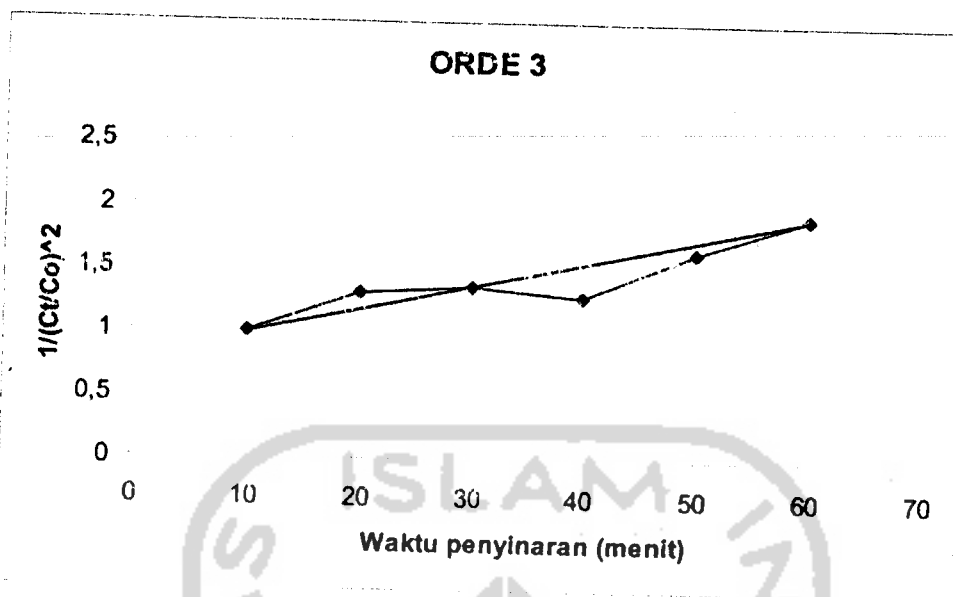
$$\frac{0,3779}{0,1} > 2,5$$

$$3,779 > 2,5 \quad (\text{data ditolak})$$



Waktu (t)	Konsentrasi (mM)	C_t/C_0	$\ln C_t/C_0$	$1/(C_t/C_0)$	$1/(C_t/C_0)^2$
10	0.06636	1	0	1	1
20	0.05787	0.8721	-0.1369	1.1467	1,3148
30	0.05699	0.8588	-0.1522	1.1644	1,3559
40	0.04844	0.7299	-0.3148	1.3701	1,28769
50	0.05189	0.7819	-0.2459	1.2789	1,6356
60	0.04780	0.7203	-0.3285	1.3883	1,9275
70	0.07957	1.1991	0.1815	0.8339	0.8339





Grafik orde reaksi untuk fotodegradasi *congo red* dengan katalis TiO_2 montmorillonit

Data slope, intercept dan linieritas masing-masing dapat dilihat pada Tabel di bawah ini:

Tabel Slope, intercept dan linieritas dari hasil fotodegradasi.

Data	Grafik orde 1	Grafik orde 2	Grafik orde 3
Slope	-0.00609	0.007268	0.017488
Intercept	0.016827	0.970353	0.90636
R	-0.912536	0.9123615	0.9100736

Lampiran 9. Perhitungan kinetika reaksi fotodegradasi dengan TiO_2 -montmorillonit mengikuti orde 1.

Reaksi:



Dengan A adalah *congo red*.

Persamaan laju reaksinya:

$$-\frac{d[A]}{dt} = k[A]$$

$$-\frac{d[A]}{[A]} = kt, \text{ diintegrasikan sehingga diperoleh:}$$

$$\ln [A]_t = -kt + \ln [A]_0$$

[A] merupakan konsentrasi *congo red* (C), sehingga:

$$\ln \frac{C_t}{C_0} = -kt$$

C_t adalah konsentrasi *congo red* setelah t menit disinari UV,

C_0 adalah konsentrasi *congo red* ketika mulai disinari UV (menit ke-10)

Dari persamaan ini dapat dibuat grafik $\ln C_t/C_0$ vs t sehingga diperoleh *slope* = 0,00609 menit^{-1} yang berarti $k = 0,3654 \text{ detik}^{-1}$ merupakan laju reaksi fotodegradasi *congo red* dan koefisien korelasi (r) = 0,912536.