

# Degradasi Metilen Biru Secara Fotolisis Dengan Katalis CDOTS Doping Au

Septian Budiman<sup>1</sup>, Hary Sanjaya<sup>2\*</sup>, Isnaeni<sup>3</sup>, Umar Kalmar Nizar<sup>4</sup>, Edi Nasra<sup>5</sup>

<sup>1,2,4,5</sup>Departemen Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Padang

Jln. Prof. Dr. Hamka Air Tawar Padang, Indonesia

<sup>3</sup>Pusat Riset Fisika Badan Riset dan Inovasi Nasional

Gedung442, Puspiptek, Tangerang Selatan, Banten 15314

\*[hary.s@fmipa.unp.ac.id](mailto:hary.s@fmipa.unp.ac.id)

**Abstract**— The degradation of methylene blue was carried out by photolysis method with the help of a Cdots/Au catalyst. This study aims to determine the optimum concentration of dopen Au for Cdots and the optimum time for degradation of methylene blue with the help of a Cdots/Au catalyst. The photolysis method was carried out in a reactor equipped with 3 15 watt lamps with a UV wavelength of 254 nm. The absorption of methylene blue was measured using a spectrophotometer UV-Vis. The optimum Au dopen results were obtained at a concentration of 25 ppm with a degradation percentage of 39.94% and the optimum time for photolysis degradation was 6 hours of irradiation with a degradation percentage of 70.28%.

**Keywords**—methylene blue, Cdots/Au, degradation, photolysis

## I. PENDAHULUAN

Pengolahan air saat ini menjadi salah satu topik terpenting untuk melindungi lingkungan dan ekosistem. Air limbah industri banyak mengandung bahan pencemar organik dan mineral. Di antara senyawa utama dalam air limbah, ditemukan senyawa pewarna. Pewarna banyak digunakan di berbagai industri, seperti: kosmetik, kertas, kulit, farmasi, industri makanan dan industri tekstil. Dunia memproduksi lebih dari  $7 \times 10^5$  ton pewarna ini setiap tahun. Diperkirakan 10% hingga 15% dari senyawa ini dibuang ke aliran limbah oleh industri tekstil[1]. Limbah juga banyak mengandung zat warna, yang paling umum digunakan adalah zat warna azo (70% dari semua zat warna). Zat warna azo memiliki struktur yang kompleks, stabilitas yang baik, dan tidak mudah terdegradasi[2].

Salah satu pewarna yang banyak digunakan dalam industri tekstil adalah *methylene blue*. Menurut Keputusan Menteri Lingkungan Hidup No. Kep51/MENLH/10/1995, ambang batas *methylene blue* dalam air adalah sekitar 5-10 mg/L. *Methylene blue* merupakan salah satu jenis sampah organik yang sulit terurai, oleh karena itu perlu dilakukan penguraian senyawa-senyawa tersebut menjadi senyawa yang tidak berbahaya bagi lingkungan melalui berbagai metode seperti biodegradasi, adsorpsi, ozonasi dan fotodegradasi. Salah satu

metode yang dapat mendukung proses dekomposisi senyawa tersebut adalah metode fotokatalitik[3].

Fotokatalisis adalah metode yang menggunakan energi foton dan radiasi ultraviolet untuk menguraikan senyawa organik menjadi senyawa yang lebih sederhana. Fotokatalisis ini menggunakan katalis dan radiasi ultraviolet[4]. Metode fotokatalitik dapat digunakan karena relatif murah dan mudah digunakan di Indonesia. Metode fotokatalitik ini memecah zat warna menjadi komponen yang lebih sederhana, sehingga lebih aman bagi lingkungan[5]. Bahan yang dapat digunakan dalam proses fotokatalitik adalah bahan semikonduktor yaitu bahan semikonduktor yang dapat mendegradasi limbah zat warna lebih cepat[6].

Salah satu material semikonduktor yang dapat digunakan adalah carbon nanodots (cdots) Carbon Dots (C-Dots) adalah material baru dari keluarga karbon, lebih kecil dari 10 nm, dibentuk oleh polimerisasi rantai karbon[7]. Cdot telah menjadi topik yang paling banyak dibicarakan para peneliti dalam dekade terakhir karena sifatnya yang unik, yaitu, fluoresensi yang kuat, tidak larut dalam air, dan tidak beracun. Atribut ini memungkinkan Cdot untuk memiliki berbagai aplikasi potensial, seperti fotokatalis, optoelektronik, tinta, sensor, sensor kimia, pencitraan biologis, dan deteksi logam berat[8]–[10].

Carbon dots, sebagai jenis baru nanomaterial fluoresen, telah menerima perhatian yang luas. Oleh karena itu, perlu dilakukan modifikasi Carbon dot dengan doping untuk mengoptimalkannya. Ion logam transisi yang digunakan sebagai dopan titik karbon adalah  $Pt^+$ ,  $Ag^+$  dan  $Au^+$ [11].

Nanokomposit adalah kombinasi dari nanomaterial dan material lain, molekul atau material berskala nano, seperti nanopartikel atau nanotube. Bahan komposit AuNPs yang didoping karbon telah menarik perhatian luas karena solusi pembuatannya yang mudah dan berbagai aplikasi potensial. Nanokomposit AuNPs yang didoping dengan carbon dot menggabungkan sifat fisik dan kimia yang sangat baik dari dua bahan: nanopartikel emas dan nanodot karbon. Modifikasi permukaan yang sederhana dan konduktivitas listrik yang sangat baik serta luas permukaan yang tinggi dari nanopartikel emas dan nanodot karbon telah menghasilkan berbagai aplikasi seperti biosensing, penginderaan gas, dan elektrokimia[6].

## II. METODOLOGI PENELITIAN

Reaktor fotokatalis yang terdiri dari 3 buah lampu UV 15 watt merk Yamano dan Ultrasonik 45 kHz merk, Neraca analitis; *Microwave* (LG MS2042D; 700 Watt), *Sentrifuge*, *Laser Ultraviolet* (UV), Spektrofotometer UV-Vis (*Ocean Optic MAYA Pro 2000*), Spektrofotometer Fotoluminesensi, TEM, 2211 pH/ORP Meter, peralatan *glass*: labu ukur, pipet takar, gelas ukur, erlenmeyer, gelas kimia dan peralatan gelas standar lainnya.

Bahan yang digunakan adalah zat warna *Methylene Blue*, Aquadest, Au, UREA, dan Ascorbic acid.

### A. Preparasi Sampel

Permodelan limbah *Methylene Blue* (10ppm) dibuat dengan melarutkan 0,05 gram serbuk *methylene blue* dalam 250ml aquabidest. Kemudian larutan induk dipipet sebanyak 50ml dan larutkan dalam 1000ml aquabidest.

### B. Preparasi Katalis Cdots/Au

#### 1. Preparasi Katalis Cdots

Timbang masing-masing Urea dan Asam Askorbat sebanyak 5 gram dan dilarutkan ke dalam 20 ml aquades dalam gelas beaker. Kemudian campurkan kedua larutan tersebut dan di radiasi dengan *microwave* selama 6 menit. Setelah proses radiasi berakhir, dihasilkan CDs dalam bentuk bubuk[12].

#### 2. Preparasi Katalis Cdots/Au

Timbang sebanyak 1gram bubuk Cdots dan larutkan dalam 100ml AuNPs 5ppm dan sentrifuge dengan kecepatan 3000

rmp selama kurang lebih 10 menit. Lakukan hal yang sama pada lautan koloid AuNPs dengan konsentrasi 10ppm, 15ppm, 20ppm, dan 25ppm. Lalu di dapatkan CDS-Au 5ppm, 10ppm, 15ppm, 20ppm, dan 25ppm kemudian aplikasikan katalis ke model limbah.

### C. Degradasi Model Limbah Methylene Blue secara Fotolisis dengan Bantuan Katalis Cdots/Au

#### 1. Penentuan Konsentrasi Doping Optimum

Larutan *methylene blue* 10ppm sebanyak 9mL dimasukan ke dalam beaker glass kemudian ditambahkan 1mL koloid Cdots/Au 5ppm, 10ppm, 15ppm, 20ppm, dan 25ppm, disinari dalam reactor fotokatalis dengan lampu UV 254 nm selama 1 jam. Hasil penyinaran dianalisa dengan spektrofotometer UV-Vis.

#### 2. Penentuan Waktu Optimum Doping Au

9 mL larutan *methylene blue* dimasukan kedalam beaker glass kemudian di tambahkan 1mL koloid Cdots/Au 5ppm disinari dalam reactor fotokatalis dengan lampu UV 254 nm selama 1 jam hingga 6 jam. Hasil penyinaran dianalisa dengan spektrofotometer UV-Vis

### D. Teknik Analisis Data

Absorbansi larutan *methylene blue* adalah data yang diperoleh dengan pengukuran menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Data dianalisis dengan melakukan perbandingan variasi penambahan katalis CDs/Au. Sedangkan produk setelah proses degradasi yang terbentuk diidentifikasi dengan spektrofotometer UV-Vis. Persentase degradasi (%D) dihitung dengan persamaan:

$$\%D = \frac{A_0 - A_t}{A_0} \times 100 \%$$

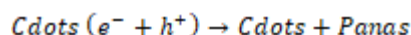
dimana,  $A_0$  = absorbansi mula-mula (cm-1),  $A_t$  = absorbansi pada waktu t [13].

## III. HASIL DAN PEMBAHASAN

### A. Degradasi Methylene Blue secara Fotolisis dengan Katalis Cdots/Au

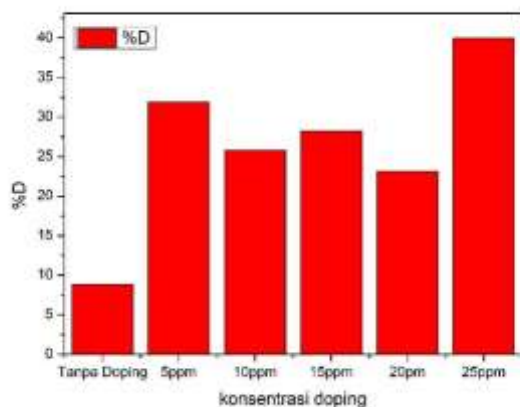
#### 1. Penentuan Konsentrasi Doping Optimum Degradasi Methylene Blue secara Fotolisis dengan Katalis Cdots/Au

Penambahan doping emas pada katalis merupakan salah satu upaya dalam yang dapat dilakukan untuk meningkatkan aktivitas katalitik. Selain dari pada itu keuntungannya pendopingan ini yaitu meningkatkan penangkapan electron (*electron trapping*) untuk menghambat terjadinya rekombinasi *electron-holes* selama proses katalitik. Rekombinasi *electron-holes* dapat ditulis dalam persamaan :



Untuk mendapatkan hasil doping Au yang optimum dilakukan variasi konsentrasi Au yang didoping terhadap CdOT dengan variasi ppm yaitu 5, 10, 15, 20, dan 25ppm. Dengan lama waktu radiasi yaitu selama 1 jam penyinaran.

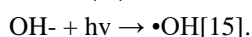
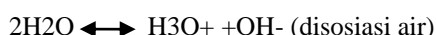
Hasil degradasi *methylene blue* dengan katalis Cdots/Au di tunjukan pada Gambar 1.



Gambar 1. Grafik Hubungan Konsentrasi Doping Au terhadap persen degradasi *Methylene Blue* secara Fotolisis

Dari grafik dapat dilihat terjadinya kenaikan persen degraasi terhadap katalis yang di doping dengan tidak didoping secara signifikan. Hal ini menunjukan bahwasanya penambahan doping terhadap katalis menunjukna hasil yang optimum, akan tetapi pada penambahan konsentrasi 10ppm samapi 20 ppm mengalami fluktuatif dimana terjadi penurunan dan kenaikan persen degradasi akan tetapi pada konsentrasi doping 25ppm terjadi peningkatan yang signifikan dan optimum dibandingkn yang lain.

Persentase degradasi yang tinggi menunjukkan adanya kontak antara *methylene blue* dengan katalis CDs-AuNPs, sehingga molekul *methylene blue* akan terdegradasi oleh radikal hidroksil yang dihasilkan selama proses fotolisis. Metode fotolisis merupakan salah satu metode AOPs. Metode AOPs merupakan metode oksidasi fase larutan yang terutama didasarkan pada pembentukan radikal hidroksil ( $\bullet\text{OH}$ ) untuk menyerang senyawa target (polutan) yang akan didegradasi. Meskipun fotokatalis sendiri merupakan proses yang membutuhkan bantuan cahaya dan katalis (semikonduktor), namun sumber cahaya yang digunakan bisa berasal dari sinar matahari atau lampu ultraviolet[14]. Dalam proses ini, katalis penyerap foton digunakan, umumnya senyawa semikonduktor digunakan  $\bullet\text{OH}$  terbentuk selama proses fotolisis, persamaan reaksi berikut dapat dilihat:



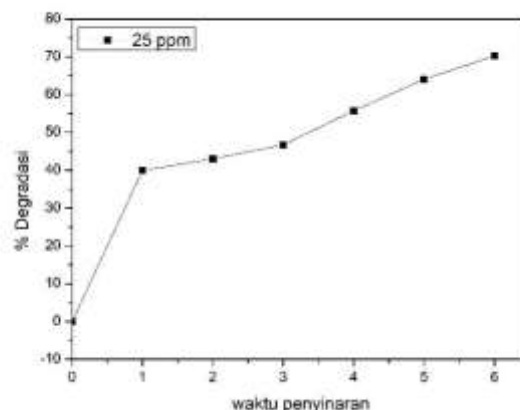
Berdasarkan kurva diatas, bahwa presentase degradasi *methylene blue* pada konsentrasi doping AuNPs dari 5ppm, 10ppm, 15ppm, 20ppm, dan 25ppm. persentase tertinggi di tunjukan pada konsentrasi doping AuNPs pada 25ppm dengan

besar persentase ialah sebesar 29,94%. dan juga hal ini menunjukkan adanya aksi sinergi dari UV dalam pembentukan OH radikal dalam proses degradasi *Methylene Blue* tersebut juga di laporkan oleh [14] melakukan degradasi dengan *methyl violet* dengan metode fotolisis menunjukan hasil degradesai sebesar 96,52% pada penelitian ini menggunakan katalis TiO yang di doping dengan SiO<sub>2</sub>.

### 2. Penentuan Waktu Optimum Doping Au optimum Degradasi Methylene Blue secara Fotolisis dengan Katalis Cdots/Au

Penentuan waktu optimum dari konsentrasi doping Au konsentrasi 25 ppm terhadap *methylene blue* 10 ppm dilakukan dengan cara memvariasikan lama penyinaran dari konsentrasi optimum doping yang di dapatkan yaitu dari 1 jam sampai 6 jam dengan waktu berkala 1 jam. Ditambahkan 1 mL Cdots/Au disinari oleh lampu UV dengan Panjang gelombang 254 nm. Pada penelitian [16] melakukan pengaruh pendopongan terhadap degradasi senyawa, pada penelitian ini melakukan degradasi dengan batuan katalis yang sudah di doping dnegn persendegradasi yang cukup optimal yaitu 94,84%. Persentase tersebut membuktikan bahwasanya katalis yang di doping memberikan hasil yang meningkat di bandingkan dengan tanpa di doping.

Hasil Fotolisis di ukur dengan UV-Vis dengan terlihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Kurva Pengaruh Waktu Penyinaran terhadap Degradasi Larutan *Methylene Blue* 10 ppm dengan 1mL Cdots/Au 25 ppm dan Disinari dengan Lampu UV 254 nm.

Dari kurva diatas dapat dilihat yaitu persentase degradasi 1 jam pertama mengalami signifikan hingga waktu 6 jam, in disebabkan oleh terdegradasinya *methylene blue* selama proses radiasi. Pada waktu 6 jam menunjukan persen degradasi optimum yaitu pada waktu penyinaran 6 jam sebesar 70,28%.

Hal ini di dapatkan dengan waktu optimum kontak antara katalis dengan Cdots/Au dengan *methylene blue* 10 ppm hingga terdegradasi optimum pada waktu 6 jam. Pengaruh waktu kontak terhadap degradasi juga di teliti oleh [17] menjelaskan pada proses semikonduktor mengadsorpsi sinar UV. Sehingga membuat electron tereksitasi ke pita konduksi dari pita valensi. Ini menyebabkan bila waktu kontak semakin lama maka semakin banyak terjadi eksitasi electron dan membuat hasil degradasi semakin meningkat karena semakin lama kontak dengan UV maka electron yang di eksitasi semakin berkelanjutan di ulang dan hasil dari electron yang tereksitasi akan menghasilkan radikal OH yang akan membantu dalam degradasi.

#### IV. KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan didapatkan kesimpulan:

1. Konsentrasi doping Au terhadap Cdots pada penyinaran 1 jam yaitu pada konsentrasi doping Au 25 ppm dengan persen degradasi sebesar 39,94%.
2. Waktu optimum degradasi dari konsentrasi doping Au terhadap Cdots dari hasil degradasi *methylene blue* secara fotolisis adalah pada waktu 6 jam penyinaran dengan persen degradasi sebesar 70,28%.

#### REFERENSI

- [1] M. Boumediene, H. Benaissa, B. George, S. Molina, and A. Merlin, "Effects of pH and ionic strength on methylene blue removal from synthetic aqueous solutions by sorption onto orange peel and desorption study," *J. Mater. Environ. Sci.*, vol. 9, no. 6, pp. 1700–1711, 2018, [Online]. Available: <https://doi.org/10.26872/jmes.2018.9.6.190><http://www.jmaterenvironsci.com>.
- [2] P. Mahamallik and A. Pal, "Photo-fenton process in Co(II)-adsorbed admicellar soft-template on alumina support for methyl orange degradation," *Catal. Today*, vol. 348, pp. 212–222, May 2020, doi: 10.1016/j.cattod.2019.07.045.
- [3] L. W. Hadayani, I. Riwayati, R. D. Ratnani, J. M. Tengah, and S. Semarang, "Adsorpsi pewarna metilen biru menggunakan senyawa xanthat pulpa kopi," *Momentum*, vol. 11, no. 1, pp. 19–23, 2015, [Online]. Available: <https://media.neliti.com/media/publications/114174-ID-adsorpsi-pewarna-metilen-biru-menggunakan.pdf>.
- [4] K. M. Abd El-Rahman, S. F. Abdallah Ali, A. I. Khalil, and S. Kandil, "Influence of poly(butylene succinate) and calcium carbonate nanoparticles on the biodegradability of high density-polyethylene nanocomposites," *J. Polym. Res.*, vol. 27, no. 8, 2020, doi: 10.1007/s10965-020-02217-y.
- [5] L. W. Hadayani, I. Riwayati, R. D. Ratnani, J. M. Tengah, and S. Semarang, "ADSORPSI PEWARNA METILEN BIRU MENGGUNAKAN SENYAWA XANTHAT PULPA KOPI," *Momentum*, vol. 11, no. 1, pp. 19–23, 2015.
- [6] D. E. Chandra, N. Hindryawati, and S. Koesnarpadi, "Degradasi Metilen Biru Dengan Metode Fotokatalitik Berdasarkan Variasi Berat Katalis Zeolit-Wo<sub>3</sub>," *Pros. Semin. Kim.*, no. SEMINAR NASIONAL KIMIA 2019, pp. 127–130, 2019, [Online]. Available: <http://jurnal.kimia.fmipa.unmul.ac.id/index.php/prosiding/article/view/873>.
- [7] I. Saraswati, N. Diantariani, and P. Suarya, "Fotodegradasi zat warna tekstil congo red dengan fotokatalis ZnO-arang aktif dan sinar ultraviolet (Uv)," *J. Kim.*, vol. 9, no. 2, 2015, [Online]. Available: [https://www.researchgate.net/publication/291335994\\_FOTODEGRADASI\\_ZAT\\_WARNA\\_TKSTIL\\_CONGO\\_RED\\_DENGAN\\_FOTOKATALIS\\_ZnO-ARANG\\_AKTIF\\_DAN\\_SINAR\\_ULTRAVIOLET\\_UV/link/56a05e008ae2c638eb81d9c/download](https://www.researchgate.net/publication/291335994_FOTODEGRADASI_ZAT_WARNA_TKSTIL_CONGO_RED_DENGAN_FOTOKATALIS_ZnO-ARANG_AKTIF_DAN_SINAR_ULTRAVIOLET_UV/link/56a05e008ae2c638eb81d9c/download).
- [8] M. P. Aji, P. A. Wiguna, S. A. Suciningtyas, Susanto, N. Rosita, and Sulhadi, "Carbon nanodots from frying oil as catalyst for photocatalytic degradation of methylene blue assisted solar light irradiation," *Am. J. Appl. Sci.*, vol. 13, no. 4, pp. 432–438, 2016, doi: 10.3844/ajassp.2016.432.438.
- [9] Y. Liu, Q. Zhou, J. Li, M. Lei, and X. Yan, "Selective and sensitive chemosensor for lead ions using fluorescent carbon dots prepared from chocolate by one-step hydrothermal method," *Sensors Actuators, B Chem.*, vol. 237, pp. 597–604, 2016, doi: 10.1016/j.snb.2016.06.092.
- [10] C. L. Li *et al.*, "Carbon dots prepared from ginger exhibiting efficient inhibition of human hepatocellular carcinoma cells," *J. Mater. Chem. B*, vol. 2, no. 28, pp. 4564–4571, 2014, doi: 10.1039/c4tb00216d.
- [11] N. Diantariani, I. Widihiati, and I. Ratih Megasari, "Fotodegradasi Metilen Biru Dengan Sinar Ultraviolet Dan Katalis ZnO," *J. Kim.*, vol. 8, no. 1, 2014, [Online]. Available: [https://www.researchgate.net/publication/291335710\\_FOTODEGRADASI\\_METILEN\\_BIRU\\_DENGAN\\_SINAR\\_ULTRAVIOLET\\_DAN\\_KATA LIS\\_AI2O3/link/56a04fac08ace4d26ad2afef/download](https://www.researchgate.net/publication/291335710_FOTODEGRADASI_METILEN_BIRU_DENGAN_SINAR_ULTRAVIOLET_DAN_KATA LIS_AI2O3/link/56a04fac08ace4d26ad2afef/download).
- [12] D. Triwardiati and I. R. Ermawati, "Analisis Bandgap Karbon Nanodots (C-Dots) Kulit Bawang Merah Menggunakan Teknik Microwave," *Pros. Semin. Nas. Teknoka*, vol. 3, no. 2502, p. 25, 2018, doi: 10.22236/teknoka.v3i0.2810.
- [13] X. Zou, X. Dong, L. Wang, H. Ma, X. Zhang, and X. Zhang, "Preparation of ni doped ZnO-TiO<sub>2</sub> composites and their enhanced photocatalytic activity," *Int. J. Photoenergy*, vol. 2014, 2014, doi: 10.1155/2014/893158.
- [14] H. Sanjaya and B. Harnum, "DEGRADASI METHYL VIOLET SECARA FOTOLISIS DAN SONOLISIS DENGAN KATALIS TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>," vol. 2, no. 2, pp. 40–45, 2013.
- [15] C. G. Joseph, G. L. Puma, A. Bono, and Y. H. Taufiq-yap, "Sonolysis, Photolysis and Sequential Sonophotolysis for the Degradation of 2, 4, 6-trichlorophenol: The Effect of Solution Concentration," no. February 2015, pp. 37–41, 2014, doi: 10.1080/00986445.2014.901221.
- [16] B. G. Bhermana, Safni, and Syukri, "Degradasi Zat Warna Metanil Yellow Secara Fotolisis Dan Penyinaran Matahari Dengan Penambahan Katalis TiO<sub>2</sub> -Anatase Dan SnO<sub>2</sub>," *J. Islam. Sci. Technol.*, vol. 1, no. 1, pp. 49–62, 2015.
- [17] N. A. dan H. S. Hardeli, Afrianti Ramadhani, Desy Kurniawati, "DEGRADASI METHYL VIOLET DAN METHYLEN BLUE OLEH FOTOKATALIS TiO<sub>2</sub>," pp. 107–114, 2019.