

PENGARUH PH TERHADAP EFISIENSI ADSORPSI METILENA BIRU OLEH OKSIDA GRAFENA

SALSABILA AZ ZAHRANI DHARMAKALIH¹, NORMAN SYAKIR³, FITRILAWATI^{3,*}

¹Program Studi Sarjana Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran, Jl. Raya Jatinangor KM 21, Jatinangor, Kabupaten Sumedang, 45363

²Program Studi Magister Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran, Jl. Raya Jatinangor KM 21, Jatinangor, Kabupaten Sumedang, 45363

³Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran, Jl. Raya Jatinangor KM 21, Jatinangor, Kabupaten Sumedang, 45363

Abstrak. Oksida grafena (*Graphene Oxide*, GO) merupakan material yang banyak diteliti sebagai adsorben untuk menghilangkan polutan warna dalam air karena GO memiliki karakteristik luas permukaan spesifik yang tinggi ($\sim 2.600 \text{ m}^2/\text{g}$). Pada penelitian ini dipelajari pengaruh pH terhadap efisiensi GO dalam mengadsorpsi metilena biru (*methylene blue*, MB). Uji adsorpsi dilakukan dengan mencampur dispersi GO (1 mg/mL) dengan larutan MB (5 mg/L) dengan rasio massa GO:MB=1:1 pada berbagai variasi pH. Campuran tersebut diaduk, kemudian dilakukan pencuplikan filtratnya pada rentang waktu tertentu untuk diukur absorbansi maksimum. Hasil yang didapat menunjukkan bahwa pH larutan MB mempengaruhi efisiensi GO dalam mengadsorpsi MB, pada kondisi basa dengan pH 8,9, efisiensi adsorpsinya adalah 78,78%, sedangkan pada kondisi asam dengan pH 3,0 efisiensi adsorpsinya adalah 30,48%. Ketika pH larutan MB ditingkatkan menjadi 11,3, efisiensi adsorpsinya berubah menjadi 53,33%.

Kata kunci: Adsorpsi, oksida grafena (GO), metil biru (MB), pH, efisiensi adsorpsi.

Abstract. *Graphene Oxide (GO)* is a material that is widely studied as an adsorbent to remove coloured pollutants in water because it has the characteristics of a high specific surface area ($\sim 2,600 \text{ m}^2/\text{g}$). In this study, the effect of pH on the efficiency of GO in adsorbing Methylene Blue (MB) was studied. The adsorption test was carried out by mixing GO dispersion (1 mg/mL) and MB solution (5 mg/L) with a mass ratio of GO: MB=1:1 at various pH variations. The mixture was stirred for a certain period, then samples were taken to measure the maximum absorbance of the MB filtrate. The results obtained showed that the pH of the MB solution could affect the efficiency of GO in adsorbing MB. In basic conditions with a pH of 8.9, the adsorption efficiency was 78.78%, while in acidic conditions with a pH of 3.0, the adsorption efficiency was 30.48%. When the pH of the MB solution was increased to 11.3, the adsorption efficiency changed to 53.33%.

Keywords: Adsorption, graphene oxide (GO), methylene blue (MB), pH, adsorption efficiency.

1. Pendahuluan

Seiring dengan berjalannya waktu, sektor industri mengalami perkembangan pesat yang ditandai dengan pertumbuhan sektor industri tersebut yang memiliki kontribusi besar terhadap perekonomian negara [1]. Penggunaan bahan kimia pada sektor industri dapat mencemari lingkungan apabila limbahnya dibuang ke lingkungan tanpa pengolahan terlebih dahulu. Bahan kimia yang banyak digunakan pada sektor industri diantaranya adalah pewarna sintesis. Metilena biru (*Methylene Blue*, MB) merupakan salah satu zat pewarna yang banyak digunakan pada sektor industri, terutama industri tekstil dan industri kertas. MB tersebut berupa kristal berwarna hijau gelap dan tidak berbau, yang berwarna biru bila dilarutkan dengan air.

Ada berbagai metode yang dapat digunakan untuk mengolah limbah zat pewarna dalam air, diantaranya metode pemisahan menggunakan membran, fotokatalitik, adsorpsi, oksidasi kimia,

* Email: fitrilawati@phys.unpad.ac.id

dan sebagainya. Adsorpsi merupakan metode yang paling banyak digunakan untuk pemisahan zat pewarna dari air limbah karena biayanya relatif murah, sederhana, dan efektif dalam pengolahan limbah warna. Prinsip kerja dari metode adsorpsi adalah penyerapan dan pengikatan molekul polutan pada permukaan zat padat (adsorben).

Salah satu material yang banyak dipelajari sebagai adsorben untuk menurunkan kadar MB dalam air adalah oksida grafena (*Graphene Oxide*, GO). GO merupakan prekursor untuk menghasilkan *Graphena* yang memiliki permukaan luas dan stuktur dua dimensi yang terdiri dari beberapa lapis monolaye. GO memiliki struktur seperti sarang lebah yang mengandung gugus fungsi oksigen seperti epoksi (C-O-C), hidroksil (C-OH), karbonil (C=O) dan karboksil (-COOH) yang terikat secara kovalen dengan atom karbon. Gugus oksigen yang terdapat pada GO tersebut menyebabkan sifatnya menjadi hidrofilik sehingga mudah terdispersi di dalam air. GO bermuatan negatif sehingga mampu untuk menarik dan mengikat polutan bermuatan positif ke permukaannya [2].

Pada penelitian sebelumnya telah dilaporkan bahwa kemampuan adsorpsi *Nano Graphene Oxide* (n-GO) terhadap MB dipengaruhi oleh konsentrasi adsorben (GO) dan konsentrasi awal MB, serta kondisi larutan seperti suhu dan pH [3]. Sebelumnya telah dilaporkan hasil studi adsorpsi MB oleh GO pada kondisi netral dengan rasio massa MB-GO = 1:2 yang mendapatkan GO hanya mampu mengadsorpsi sekitar 74% dari jumlah pewarna MB yang terkandung di dalam air [4]. Pada penelitian ini dikaji efisiensi pengurangan konsentrasi MB oleh GO pada berbagai kondisi pH dengan menggunakan rasio massa MB-GO = 1:1. Hasil studi ini diharapkan akan menambah informasi mengenai pengaruh pH terhadap sifat adsorpsi MB oleh GO.

2. Bahan dan Metoda

Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah dispersi GO komersial (4 mg/mL, Graphenea SA ES A75022608) sebagai material adsorben, serbuk MB (Certistain Methylene Blue, C.I.52015) sebagai model polutan, KOH dan HCl (1 M) sebagai senyawa pengatur kondisi basa dan asam, serta akuades sebagai pelarut.

Ada beberapa tahapan eksperimen yang dilakukan antara lain penyiapan akuades dengan berbagai pH, penyiapan larutan MB dengan berbagai pH, penyiapan dispersi GO. Akuades dengan berbagai pH dibuat dengan menambahkan larutan KOH dan HCl (1 M) ke dalam akuades yang terdapat di dalam *beaker glass* (Iwaki, 250 mL). Derajat keasaman akuades diukur menggunakan pH meter (Lutron PH-201). Larutan MB (5 mg/L) dengan berbagai variasi pH dibuat dengan mencampurkan 75 mL akuades pH tertentu dan 75 mL larutan MB (10 mg/L). Beberapa variasi pH larutan MB (5 mg/L) yang digunakan pada eksperimen adsorpsi diperlihatkan pada Tabel 1. Dispersi GO (1 mg/mL) dibuat dengan menambahkan 7,5 mL akuades ke dalam 2,5 mL dispersi GO komersial (4 mg/mL). Dispersi GO tersebut diaduk menggunakan *magnetic stirrer* (C-MAG HS7) selama 30 menit dengan kecepatan putaran 250 rpm, kemudian disonikasi menggunakan *ultrasonic batch* (Branson 1800) untuk mencegah terbentuknya gumpalan [4].

Eksperimen adsorpsi dilakukan dengan menambahkan 0,5 mL dispersi GO (1 mg/mL) ke dalam 100 mL larutan MB (5 mg/L) di dalam *beaker glass*. Campuran tersebut diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 120 menit dengan kecepatan putaran 250 rpm. Selama proses tersebut, dilakukan pencuplikan sampel sebanyak 5 mL sampel dalam kurun waktu tertentu. Filtrat MB didapat dari hasil disentrifugasi cuplikan menggunakan *centrifuge* (EBA 200 Hettich Zentrifuge) selama 10 menit dengan kecepatan 3600 rpm. Rentang waktu pencuplikan sampel yang digunakan adalah 10", 20", 30", 1', 2', 5', 10', 20', 40', 60', 90', dan 120'. Filtrat MB yang didapat dari

proses adsorpsi tersebut diukur menggunakan spektrofotometer UV-Vis (T70 +UV/VIS Spectrometer PG Instruments Ltd) dengan panjang gelombang 500 nm – 600 nm. Eksperimen adsorpsi dilakukan pada larutan MB dengan pH yang lain. Nilai absorbansi pada panjang gelombang puncak maksimum tersebut dipergunakan untuk mengestimasi nilai efisiensi removal MB oleh GO untuk setiap variasi pH.

Tabel 1. pH larutan MB dengan konsentrasi 10 mg/L dan 5 mg/L

Variasi pH Larutan MB	pH MB 10 mg/L	pH MB 5 mg/L
Asam	3,1	3,0
	5,4	5,3
Netral	6,9	7,0
Basa	8,9	8,9
	11,3	11,3

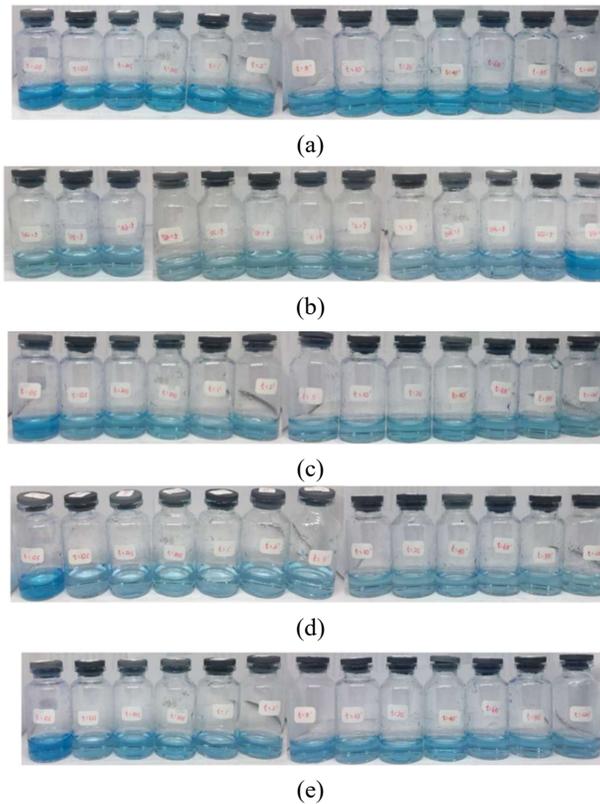
3. Hasil dan Pembahasan

Gambar 1 menunjukkan perubahan warna filtrat larutan MB setelah proses adsorpsi menggunakan GO pada berbagai variasi pH. Perubahan warna filtrat MB tersebut mengindikasikan adanya perubahan konsentrasi MB setelah proses adsorpsi. Apabila hanya diamati secara visual saja akan sulit untuk menganalisa proses adsorpsi yang terjadi. Sehingga dilakukan pengukuran perubahan tinggi puncak absorbansi filtrat MB menggunakan *Spektrofotometer UV-Vis* dengan panjang gelombang pada rentang 500 nm – 800 nm.

Spektrum dari permeat larutan MB pada berbagai pH yang diukur menggunakan spektrofotometer UV-Vis diperlihatkan pada Gambar 2. Tampak bahwa absorbansi dari permeat tersebut mengalami penurunan sebagai fungsi waktu, namun panjang gelombang maksimum dari permeat MB relatif tetap pada $\lambda = 666 \text{ nm}$. Tampak pula bahwa penurunan absorbansi permeat MB tersebut berbeda-beda bergantung pada pH dari larutan MB. Selanjutnya, data absorbansi pada panjang gelombang maksimum tersebut digunakan untuk mengestimasi nilai efisiensi GO dalam mengadsorpsi MB pada berbagai variasi pH.

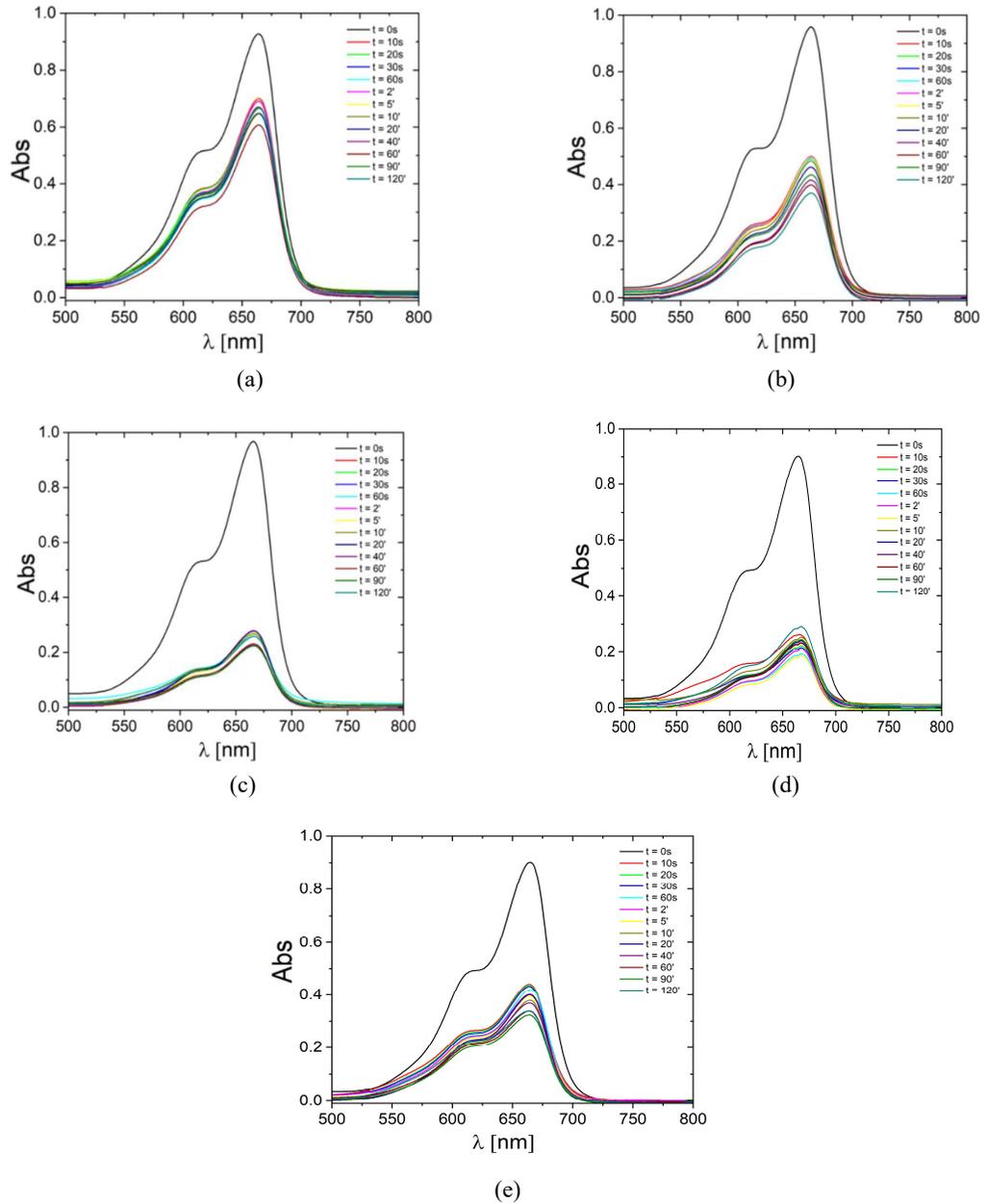
Selanjutnya dilakukan perhitungan untuk mengestimasi nilai efisiensi removal MB oleh GO pada berbagai variasi pH. Berdasarkan hukum Lambert-Beer, absorbansi (A) berbanding lurus dengan konsentrasi (C) dan tebal kuvet (l). Sehingga nilai efisiensi removal MB oleh GO dapat menggunakan Persamaan (1), yang mana $R_t[\%]$ merupakan efisiensi removal MB oleh GO pada selang waktu tertentu atau sesaat, A_0 merupakan nilai absorbansi pada saat $t = 0$ dan A_t merupakan nilai absorbansi pada waktu tertentu.

$$R_t[\%] = \frac{A_0 - A_t}{A_0} \times 100 \quad (1)$$

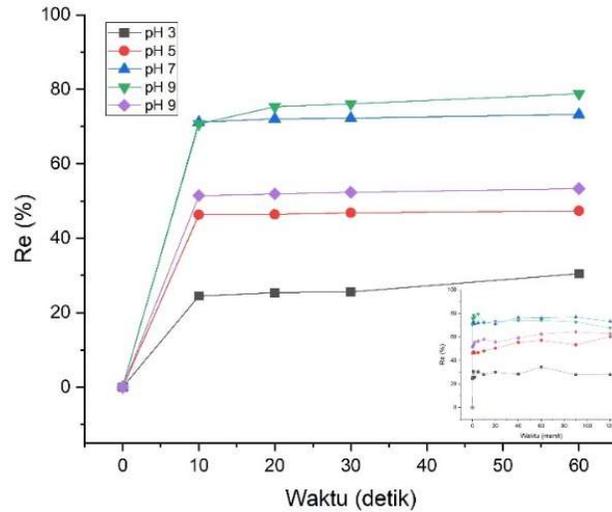


Gambar 1. Perbandingan permeal MB hasil adsorpsi oleh GO pada beberapa rentang waktu pencuplikan untuk larutan MB dengan berbagai pH (a) pH 3, (b) pH 5, (c) pH 7, (d) pH 9, dan (e) pH 11.

Gambar 3 memperlihatkan perbandingan efisiensi adsorpsi GO pada larutan MB dengan berbagai variasi pH larutan terhadap waktu pencuplikan. Pada Gambar 4(a) diperlihatkan perbandingan efisiensi adsorpsi GO terhadap larutan MB pada berbagai variasi pH untuk berbagai waktu pencuplikan selama 120 menit. Dapat dilihat bahwa antara rentang waktu 2 menit hingga 120 menit, efisiensi GO dalam mengadsorpsi MB mengalami fluktuasi yang menunjukkan adanya proses adsorpsi dan desorpsi. Hal tersebut dapat terjadi ketika GO sudah mencapai kondisi saturasi. Kondisi saturasi menunjukkan bahwa permukaan GO sudah penuh dan mencapai kapasitas maksimum dalam mengadsorpsi MB.

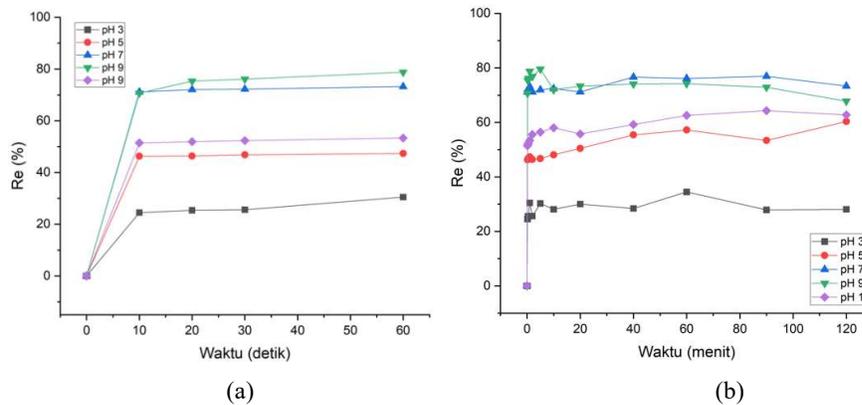


Gambar 2. Spektrum UV-Vis permeal MB hasil adsorpsi oleh GO pada beberapa rentang waktu pencuplikan untuk larutan MB dengan berbagai pH (a) pH 3, (b) pH 5, (c) pH 7, (d) pH 9, dan (e) pH 11

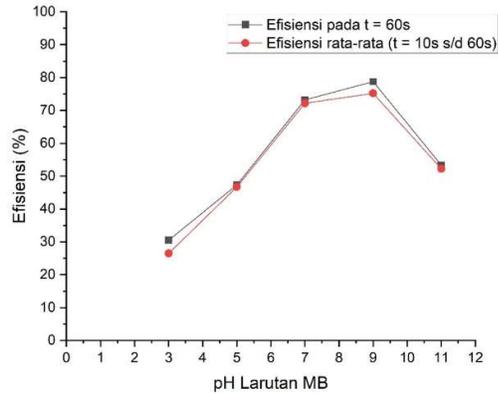


Gambar 3. Perbandingan efisiensi adsorpsi GO pada larutan MB dengan berbagai variasi pH larutan terhadap waktu pencuplikan.

Pada Gambar 4 (b) dan Tabel 2 diperlihatkan bahwa efisiensi adsorpsi GO dalam rentang waktu satu menit pertama. Efisiensi tertinggi GO dalam mengadsorpsi larutan MB terjadi pada pH 9 yaitu mencapai 79%. Sedangkan efisiensi terendah tercatat saat pH larutan MB sebesar 3 yaitu sebesar 31%. Hasil tersebut menunjukkan bahwa pH larutan MB mempengaruhi kapasitas adsorpsi dan efisiensi adsorpsi GO. Hasil tersebut disebabkan pH dapat mempengaruhi sifat kimia larutan MB, aktivitas gugus fungsi dalam bahan adsorben, persaingan antara ion-ion yang terdapat di dalam larutan, dan muatan permukaan bahan adsorben [5,6].



Gambar 4. Perbandingan efisiensi adsorpsi GO terhadap larutan MB dengan berbagai variasi pH (a) Pada berbagai rentang waktu pencuplikan selama 120 menit, (b) pada berbagai rentang waktu pencuplikan selama menit pertama (Gambar 5).



Gambar 5. Kurva efisiensi adsorpsi maksimum dan efisiensi adsorpsi rata-rata GO terhadap variasi pH larutan MB.

Gugus fungsi oksigen yang dimiliki GO membuat bahan tersebut bersifat hidrofilik yang bermuatan negatif, sehingga dapat terjadi interaksi elektrostatik dengan pewarna organik yang bersifat kationik [3, 4]. Ketika pH larutan MB menjadi basa, maka gugus karboksil dan sebagian gugus hidroksil pada adsorben GO dapat mengalami deprotonasi (melepaskan ion H^+), sehingga membentuk gugus $-COO^-$ dan $-O^-$. Namun, apabila pH larutan asam, maka akan terjadi persaingan antara ion hidrogen dan molekul pewarna untuk tempat pengikatan pada permukaan adsorben [7]. Namun, pada Gambar 4 terlihat bahwa ketika pH larutan MB sebesar 11, terjadi penurunan efisiensi GO dalam mengadsorpsi MB menjadi 53%. Hal ini dapat terjadi karena GO kehilangan terlalu banyak ion H^+ , sehingga dapat merubah sifat-sifat kimia dan fisika permukaan adsorben. Gambar 5 dan Tabel 3 memperlihatkan efisiensi maksimum dan efisiensi rata-rata GO dalam mengadsorpsi larutan MB pada setiap variasi pH dalam selang waktu satu menit pertama.

Tabel 2. Perbandingan efisiensi GO dalam mengadsorpsi MB untuk berbagai variasi pH dalam rentang waktu 1 menit pertama.

Variasi pH larutan MB	R_t (%)				
	0s	10s	20s	30s	60s
3,0	0	24,512	25,380	25,597	30,477
5,3	0	46,302	46,409	46,838	47,374
7,0	0	71,148	72,079	72,285	73,216
8,9	0	70,667	75,333	76,111	78,778
11,3	0	51,444	51,889	52,333	53,333

Tabel 3. Nilai efisiensi maksimum ($t = 60s$) dan efisiensi rata-rata ($t = 10s$ s/d $60s$) GO dalam mengadsorpsi larutan MB pada setiap variasi pH.

pH larutan MB	R_t (%)	\bar{R}_t (%)
3,0	30,477	26,491
5,3	48,747	46,731
7,0	73,216	72,182
8,9	78,778	75,222
11,3	53,333	52,250

4. Kesimpulan

Berdasarkan eksperimen yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa pH dapat mempengaruhi kemampuan oksida grafena dalam mengadsorpsi metilena biru yang diindikasikan oleh nilai efisiensi removal. Didapatkan efisiensi removal optimum terjadi pada kondisi pH 8,9 sebesar 78,78%. Karena, pada kondisi basa, gugus fungsi karboksil dan sebagian gugus hidroksil pada GO dapat mengalami deprotonasi (melepaskan ion H^+), sehingga interaksi elektrostatis antara MB dengan GO lebih mudah terjadi.

5. Ucapan Terima Kasih

Penelitian ini sebagian didanai oleh Program Penelitian ALG Universitas Padjadjaran dengan nomor kontrak 1549/UN6.3.1/PT.00/2023 tanggal 27 Maret 2023

Daftar Pustaka

- [1] Kementerian Perindustrian, "Industri Tetap Tumbuh Di Tengah Kelesuan Ekonomi," *Media Industri*, No. 05, 2013, Diakses 08 Desember 2023 dari www.kemeperin.go.id
- [2] S. Shaviz, A. Sahukaru, V. Marupudi, P.Venkata, V.Meena, "Adsorption of methylene blue dye on nano graphene oxide thermodynamics and kinetic studies," *Materials Today: Proceedings.*, No. 59, 2022, pp: 667–672, doi: 10.1016/j.matpr.2021.12.199.
- [3] J. Sahar, A. Naeem, M. Farooq, S. Zareen, Farida, and S. Sherazi, "Kinetic Studies of Graphene Oxide Towards the Removal of Rhodamine B and Congo Red," *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, vol. 00, no. 00, pp. 1–15, 2019, doi: 10.1080/03067319.2019.1679802.
- [4] H. Istiqomah, H. Jedija, B. Ayi, S. Norman, and Fitrilawati, "Studi Adsorpsi Methylene Blue Oleh Graphene Oxide Dengan Dan Tanpa Penyinaran Menggunakan Sinar UV-A," *Jurnal Ilmu dan Inovasi Fisika.*, vol. 06, No. 02, 2022, pp: 174 – 181, ISSN: 2549-0516.
- [5] Y. Muge, "Graphene oxide/hollow mesoporous silica composite for selective adsorption of methylene blue," *Microporous and Mesoporous Materials.*, No. 330 (2022) 111570, doi: 10.1016/j.micromeso.2021.111570.
- [6] J. Sahar, A. Naeem, M. Farooq, S. Zareen, Farida, and S. Sherazi, "Kinetic studies of graphene oxide towards the removal of rhodamine B and congo red," *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, Vol. 00, No. 00, (2019), pp. 1–15, doi: 10.1080/03067319.2019.1679802

- [7] R. Eszter, T. Szende, "Factors Affecting Synthetic Dye Adsorption; Desorption Studies: A Review of Results from the Last Five Years (2017–2021)," *Molecules.*, vol. 26, 2021, pp: 2-31, doi: 10.3390/molecules26175419.