

**SINTESIS NANOKOMPOSIT TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs DAN  
APLIKASINYA UNTUK DEGRADASI FOTOKATALITIK  
*METHYL ORANGE***

**JURNAL TUGAS AKHIR**

**ARDIAN KRIS BRAMANTYO**  
**12317006**



**PROGRAM STUDI TEKNIK METALURGI  
FAKULTAS TEKNIK DAN DESAIN  
INSTITUT TEKNOLOGI SAINS BANDUNG  
KOTA DELTAMAS  
SEPTEMBER 2021**

**HALAMAN JUDUL**  
**SINTESIS NANOKOMPOSIT TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs DAN**  
**APLIKASINYA UNTUK DEGRADASI FOTOKATALITIK**  
***METHYL ORANGE***

**JURNAL TUGAS AKHIR**

**ARDIAN KRIS BRAMANTYO**

**12317006**

Diajukan Sebagai Salah Satu Syarat untuk Mendapatkan Gelar Sarjana Teknik  
Pada Program Studi Teknik Metalurgi



**PROGRAM STUDI TEKNIK METALURGI**  
**FAKULTAS TEKNIK DAN DESAIN**  
**INSTITUT TEKNOLOGI SAINS BANDUNG**  
**KOTA DELTAMAS**  
**SEPTEMBER 2021**

## **LEMBAR PENGESAHAN**

# **SINTESIS NANOKOMPOSIT TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs DAN APLIKASINYA UNTUK DEGRADASI FOTOKATALITIK *METHYL ORANGE***

## **JURNAL TUGAS AKHIR**

**ARDIAN KRIS BRAMANTYO**

**12317006**

Diajukan Sebagai Salah Satu Syarat untuk Mendapatkan Gelar Sarjana Teknik  
Pada Program Studi Teknik Metalurgi

Menyetujui,

Pembimbing 1



Prof. Dr. Ir. Syoni Soepriyanto, M.Sc.  
NIP: 195203181976031001

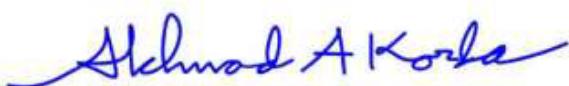
Pembimbing 2



Murni Handayani Ph.D.  
NIP: 197906072005022001

Mengetahui,

Ketua Program Studi Teknik Metalurgi



Dr. Eng. Akhmad Ardian Korda, ST, MT  
NIP: 197412042008011011

# Sintesis Nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs dan Aplikasinya untuk Degradasi Fotokatalitik *Methyl Orange*

Ardian Kris Bramantyo

Teknik Metalurgi, Institut Teknologi Sains Bandung

e-mail: akbramantyo15@hotmail.co.id

**Abstrak:** Telah berhasil dilakukan sintesis nanokomposit rGO-AgNPs (rGA) yang dapat dipakai sebagai material pendukung fotokatalis TiO<sub>2</sub> untuk degradasi *Methyl Orange* (MO). Berdasarkan pengujian SEM/EDX, XRD, dan UV-Visible Spectrofotometer nanokomposit rGA telah berhasil disintesis. Efisiensi degradasi fotokatalitik MO dengan TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs diperoleh paling tinggi yaitu 84,5% dibandingkan TiO<sub>2</sub> murni yang hanya 54%. Hal ini disebabkan karena adanya interaksi sinergis antara TiO<sub>2</sub>, Ag, dan lapisan *graphene* dalam mencegah terjadinya rekombinasi pasangan elektron-hole.

Kata kunci: fotokatalitik, TiO<sub>2</sub>, *Methyl Orange*, rGO, nanopartikel perak

## 1. Pendahuluan

Pertumbuhan industri tekstil, farmasi, plastik, minyak bumi, dan kertas yang terus bertambah dapat menghasilkan air limbah yang terkontaminasi polutan organik dan berdampak secara langsung maupun tidak langsung terhadap lingkungan [1,2]. Lebih dari 65% jenis pewarna yang digunakan pada industri tekstil adalah pewarna azo ( $-N=N-$ ). Pewarna ini sangat berbahaya karena menyebabkan berbagai penyakit kulit, iritasi, rasa terbakar, dan gangguan pencernaan. Pewarna azo sangat sulit terurai dan sering kali mengakibatkan pencemaran air dan masalah lingkungan yang serius [3]. *Methyl Orange* (MO) adalah pewarna azo anionik dan larutannya memiliki pH sekitar 6,5. Selain digunakan untuk pewarna industri, MO juga dikenal sebagai indikator pH di laboratorium dengan rentang perubahan warna merah hingga kuning pada pH 3,1–4,4. MO adalah pewarna azo yang tersulfonasi dan gugus fungsinya membuat warnanya terlihat cerah di dalam air.

Proses Oksidasi Lanjut (AOP) telah terbukti sangat efisien untuk mendegradasi berbagai limbah seperti obat-obatan, pewarna, hidrokarbon, dan pestisida yang berasal dari industri. AOP terbagi menjadi dua sistem [4], yaitu: (i) homogen, di mana tidak ada penggunaan katalis padat dan (ii) heterogen yang ditandai dengan pemakaian katalis semikonduktor seperti fotokatalisis heterogen. Fotokatalisis heterogen memerlukan radiasi UV atau cahaya tampak untuk mengaktifkan fotokatalis. Permukaan fotokatalis yang telah aktif selanjutnya terjadi serangkaian reaksi redoks untuk menghasilkan spesies oksigen yang sangat reaktif, *reactive oxygen species* (ROS) yang dapat digunakan untuk mendegradasi polutan organik.

TiO<sub>2</sub> memiliki sifat unggul seperti tidak beracun, stabilitas yang tinggi, dan kemampuan redoks. Berdasarkan sifat-sifat tersebut material ini dapat diterapkan dalam berbagai aplikasi teknologi seperti sensor, sel surya, dan untuk perbaikan lingkungan. Anatase TiO<sub>2</sub> sangat stabil pada ukuran partikel yang sangat kecil (< 14 nm), sedangkan rutile TiO<sub>2</sub> lebih stabil dalam bentuk *bulk* sehingga anatase TiO<sub>2</sub> sangat cocok untuk digunakan dalam aplikasi katalitik. Aktivitas fotokatalitik anatase TiO<sub>2</sub> memiliki beberapa keterbatasan, karena energi celah pita yang tinggi (3,2 eV) dan cepatnya rekombinasi pembawa muatan. Sehingga memodifikasi permukaan TiO<sub>2</sub> dengan penambahan karbon, *graphene*, atau deposisi logam dapat dilakukan untuk menurunkan energi celah pita dan meningkatkan efisiensi degradasi fotokatalitik [5].

## 2. Material dan Prosedur

### 2.1 Material

Grafit diperoleh dari elektroda bekas PT. KS, *Methyl Orange* (MO), KMnO<sub>4</sub>, NaNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30%, HCl, AgNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub> 25%, NaBH<sub>4</sub>, TiO<sub>2</sub>.

### 2.2 Sintesis GO

GO disintesis berdasarkan metode modifikasi Hummer. Grafit (2 gram) ditambahkan ke dalam larutan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (90 ml), NaNO<sub>3</sub> (2 gram), dan KMnO<sub>4</sub> (10 gram). Larutan diaduk pada suhu 18 °C selama 2 jam. Suhu larutan kemudian ditetapkan 40 °C dan diaduk selama 20 jam. Campuran kemudian ditambahkan akuades (670 ml) dan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 30% (13 ml) kemudian ditetes HCl 2 M hingga pH-nya 2. Larutan kemudian disentrifugasi hingga terbentuk substansi seperti gel dan pH-nya netral. Substansi tersebut selanjutnya dikeringkan pada temperatur 75 °C selama 14 jam. GO yang sudah kering kemudian di-*hand-milling* untuk mendapatkan serbuk GO.

### 2.3 Sintesis rGO-AgNPs

GO (0,5 gram) dilarutkan ke dalam akuades (50 ml) dan etanol (50 ml). Larutan kemudian disonikasi 30 menit dan ditambahkan AgNO<sub>3</sub> 0,1 M (15 ml) lalu ditetes NH<sub>3</sub> 25% hingga pH-nya 10. Selanjutnya ditambahkan NaBH<sub>4</sub> 0,1 M (30 ml) dan dilakukan proses *reflux* selama 18 jam pada suhu 90 °C. Larutan hasil *reflux* kemudian disentrifugasi hingga pH-nya netral untuk menghilangkan ion perak dan pengotor lainnya. Terakhir, nanokomposit dikeringkan dalam tanur pada suhu 80 °C selama 24 jam dan dilanjutkan proses *milling*.

### 2.4 Percobaan fotokatalitik

Fotokatalis (15 mg) didispersikan ke dalam 150 ml larutan MO (10 mgL<sup>-1</sup>). Larutan lalu diaduk selama 1 jam dalam kondisi gelap agar tercapai kesetimbangan adsorpsi-desorpsi. Reaktor kemudian disinari menggunakan lampu UV ( $\lambda_{max} = 365$  nm). Pada interval setiap 10 menit, 4 mL alikuat larutan MO diambil, disentrifugasi, dan disaring untuk memisahkan katalisnya. Supernatant yang diperoleh selanjutnya digunakan untuk menentukan absorbansi MO. Untuk mengetahui pengaruh pH maka dilakukan variasi pada pH 2,7, dan 10 menggunakan fotokatalis TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs.

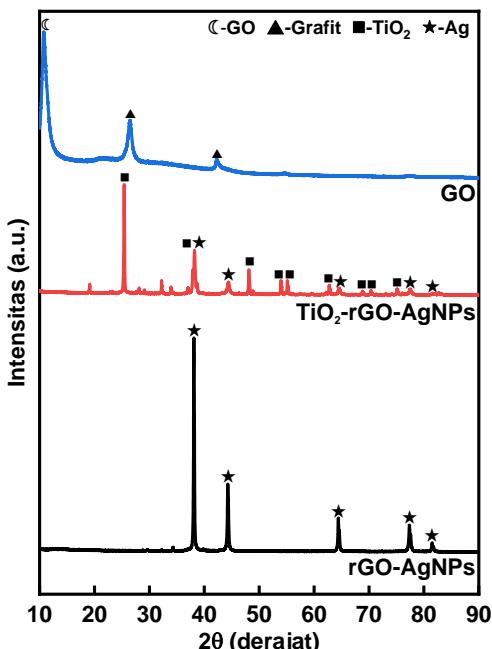
## 2.5 Karakterisasi

Morfologi permukaan dan komposisi unsur nanokomposit  $\text{TiO}_2$ -rGO-AgNPs yang telah disintesis dievaluasi menggunakan FE-SEM JIB-4610F dan Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDX Oxford Instruments X-Max). Ukuran rerata AgNPs dihitung dengan perangkat lunak ImageJ. Pengujian XRD dilakukan pada  $10^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$  dengan radiasi  $\text{Cu K}\alpha$  ( $\lambda = 0,1542 \text{ nm}$ ), 40 kV, 30 mA pada suhu kamar. Kecepatan pemindaian yang digunakan adalah  $20^\circ = 1^\circ/\text{menit}$ . Sampel uji XRD yang telah dimilling menjadi serbuk kemudian diletakkan pada *holder* aluminum. Analisis UV-Vis dilakukan dengan menimbang 1 mg GO, rGO-AgNPs,  $\text{TiO}_2$ -rGO-AgNPs dan didispersikan ke dalam 10 ml akuades. Larutan kemudian diaduk dan disonikasi masing-masing selama 30 menit kemudian absorbansinya diukur menggunakan Double Beam UV/Vis Spectrophotometer LUS-B12 pada panjang gelombang 200-800 nm. Spektrum UV-Vis juga digunakan untuk menghitung persen degradasi *Methyl Orange* dari larutan yang didapatkan dari pengujian fotokatalitik.

## 3. Hasil dan Pembahasan

### 3.1 Karakterisasi Difraksi sinar-X

Pola difraksi sinar-X (XRD) GO, rGO-AgNPs, dan  $\text{TiO}_2$ -rGO-AgNPs ditunjukkan pada [gambar 1](#). GO telah berhasil disintesis yang ditandai dengan munculnya puncak karakteristik di  $10,75^\circ$  ( $0\ 0\ 1$ ) [6]. Grafit belum teroksidasi sempurna karena masih terdapat puncak-puncak karakteristik grafit di  $26,37^\circ$  ( $0\ 0\ 2$ );  $41,16^\circ$  ( $1\ 0\ 0$ );  $54,57^\circ$  ( $0\ 0\ 4$ ); dan  $77,51^\circ$  ( $1\ 1\ 0$ ) yang sesuai dengan JCPDS No. 041-1487 [7,8]. Jarak antarlapis GO dan grafit dihitung dengan



Gambar 1 Pola XRD Material

persamaan Bragg  $n\lambda=2ds\sin\theta$  ( $n$ , orde difraksi = 1;  $\lambda$ , panjang gelombang sinar-X =  $1,5419 \text{ \AA}$ ;  $d$ , jarak antarlapis ( $\text{\AA}$ );  $\theta$ , posisi puncak Bragg (radian)) dan diperoleh sebesar  $8,2 \text{ \AA}$  dan  $3,4 \text{ \AA}$  [9]. Jarak antarlapis GO yang besar disebabkan karena adanya pembentukan gugus fungsi seperti hidroksil, epoksi, dan karboksil karena proses interkalasi molekul air di antara lapisan grafit yang dapat meningkatkan jarak antarlapis grafit [10,11].

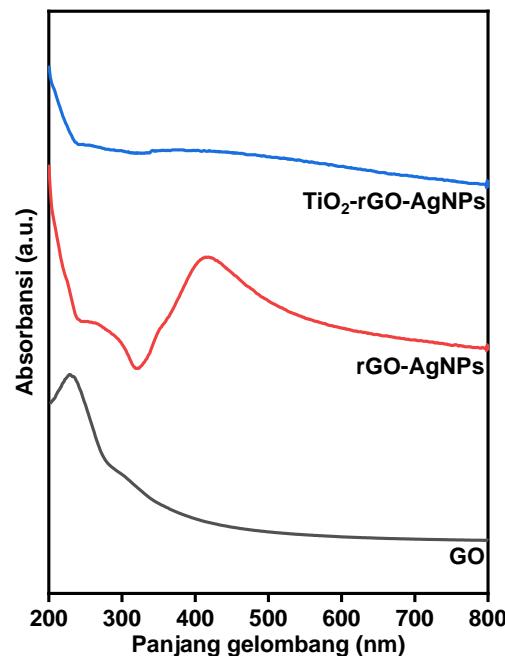
Pola difraksi rGO tidak terlihat pada nanokomposit rGO-AgNPs yang disebabkan karena tingginya intensitas Ag pada  $38,11^\circ$  yang

dapat menekan puncak karakteristik rGO pada kisaran  $2\theta = 23-26^\circ$  [12,13,14,15]. Komposit rGO-AgNPs menunjukkan beberapa pola difraksi AgNPs yang nilainya sesuai dengan basis data JCPDS No. 04-0783 pada  $38,11^\circ$ ;  $44,29^\circ$ ;  $64,43^\circ$ ;  $77,39^\circ$ ; dan  $81,53^\circ$  dengan bidang kristalografi masing-masing adalah ( $1\ 1\ 1$ ), ( $2\ 0\ 0$ ), ( $2\ 2\ 0$ ), ( $3\ 1\ 1$ ), dan ( $2\ 2\ 2$ ) serta memiliki struktur fcc [16]. Ukuran rerata kristalit AgNPs dihitung menggunakan persamaan Debye-Scherrer,  $D = K\lambda/(\beta \cos \theta)$  ( $D$ , ukuran kristalit (nm);  $K$ , konstanta Scherrer = 0,94;  $\lambda$ , panjang gelombang sinar-X =  $0,15419 \text{ nm}$ ;  $\beta$ , FWHM (radian); dan  $\theta$ , posisi puncak (radian)) dan diperoleh sebesar 30 nm.

Karakteristik puncak XRD untuk rGO juga tidak terlihat pada nanokomposit  $\text{TiO}_2$ -rGO-AgNPs yang disebabkan karena tumpang tindih dengan puncak anatase ( $101$ ) di  $25,41^\circ$ . Puncak GO juga tidak terlihat pada  $10,75^\circ$  karena GO telah berhasil tereduksi menjadi rGO [17]. Kemudian nilai  $2\theta$  pada  $25,41^\circ$ ;  $37,88^\circ$ ;  $48,13^\circ$ ;  $53,96^\circ$ ;  $55,15^\circ$ ; dan  $62,78^\circ$  sesuai dengan JCPDS No. 01-084-1286 untuk anatase  $\text{TiO}_2$  yang memiliki bidang kristal ( $1\ 0\ 1$ ), ( $0\ 0\ 4$ ), ( $2\ 0\ 0$ ), ( $1\ 0\ 5$ ), ( $2\ 1\ 1$ ), dan ( $2\ 0\ 4$ ) [12]. Puncak untuk AgNPs juga terlihat pada  $38,21^\circ$  ( $1\ 1\ 1$ );  $44,39^\circ$  ( $2\ 0\ 0$ );  $64,51^\circ$  ( $2\ 2\ 0$ );  $77,46^\circ$  ( $3\ 1\ 1$ );  $81,62^\circ$  ( $2\ 2\ 2$ ) dan sesuai dengan JCPDS No. 04-0783 [16].

### 3.2 Karakterisasi UV-Visible Spektrofotometer

Hasil pengujian UV-Vis untuk GO, rGO-AgNPs, dan  $\text{TiO}_2$ -rGO-AgNPs ditunjukkan pada [gambar 2](#). Spektrum GO yang diperoleh menunjukkan adanya pita yang kuat pada 228 nm dan bahu pada 300 nm yang sesuai dengan literatur [18]. Material karbon umumnya memiliki puncak pada 200-250 nm dalam spektrum UV yang terkait dengan hibridisasi  $sp^2$  [19]. Pita absorpsi pada 228 nm berasal dari transisi  $\pi - \pi^*$  ikatan cincin aromatik  $C=C$  [20]. Puncak absorpsi pada 228 nm adalah pita absorpsi karakteristik yang digunakan untuk mengidentifikasi GO yang disintesis dari grafit [21]. Sementara pita pada sekitar 300 nm menunjukkan terjadinya transisi  $n - \pi^*$  ikatan karbonil ( $C=O$ ) [15].



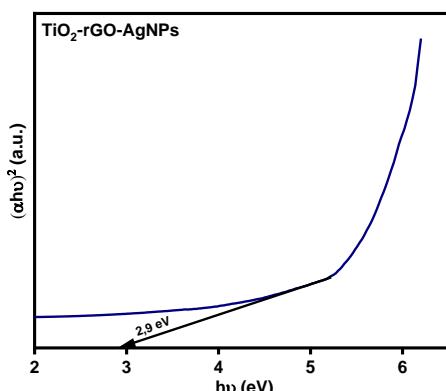
Gambar 2 Pola UV-Vis Material

Berdasarkan spektrum UV, nanokomposit rGO-AgNPs telah berhasil disintesis yang ditunjukkan oleh puncak absorpsi di daerah cahaya tampak pada 410 nm yang disebabkan karena adanya resonansi plasmon permukaan dari nanopartikel perak [22]. Selain itu puncak rGO juga ditemukan pada 260 nm, yang berasal dari transisi  $\pi - \pi^*$  ikatan cincin aromatik C=C [23]. Kemudian pada spektrum UV nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs ditemukan adanya puncak rGO di sekitar 250 nm dan puncak dari AgNPs pada ~410 nm, sementara *shoulder peak* TiO<sub>2</sub> di sekitar 350 nm tidak terlihat dengan jelas karena adanya puncak resonansi plasmon permukaan AgNPs yang lebih kuat.

Untuk mengetahui nilai energi celah pita nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs maka dihitung menggunakan persamaan Tauc [24]:

$$\alpha h\nu = D(h\nu - E_g)^n$$

Di mana  $\alpha$  = koefisien absorpsi,  $h\nu$  = energi foton,  $E_g$  = energi celah pita,  $D$  = konstanta, dan  $n$  = indeks (2, 3, 1/2 dan 1/3 tergantung pada transisi pita ke pita). Grafik  $(\alpha h\nu)^2$  terhadap  $h\nu$  ditunjukkan pada gambar 3. Dengan mengekstrapolasi daerah linier grafik ke sumbu  $h\nu$  maka diperoleh nilai energi celah pita sebesar 2,9 eV. Nilai energi celah pita nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs ditemukan lebih kecil dibandingkan TiO<sub>2</sub> yang berdasarkan literatur adalah 3,3 eV [25].



Gambar 3 Tauc plot TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs

### 3.3 Degradasi Methyl Orange

Grafik UV-Vis untuk degradasi fotokatalitik *Methyl Orange* pada fotokatalis TiO<sub>2</sub> dan nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs ditampilkan pada gambar 4. Berdasarkan spektrum absorpsi UV pada semua fotokatalis ditemukan adanya dua puncak karakteristik absorpsi MO yang terletak pada 272 nm yang berasal dari cincin benzena MO dan 463 nm yang disebabkan karena ikatan azo

“– N=N–“ dari MO. Puncak absorpsi MO di 463 nm membuatnya tampak berwarna oranye [3]. Setelah proses degradasi selesai, puncak absorpsi pada 272 nm dan 463 nm terlihat melandai dengan tanpa adanya pergeseran puncak.

Efisiensi degradasi fotokatalitik dihitung menggunakan rumus  $\eta = [(C_0 - C)/C_0] \times 100\%$  hingga 100 menit penyinaran cahaya UV. Kurva degradasi pewarna MO diperoleh berbentuk monoeksponensial (Gambar 5 a). Pada kasus hanya terdapat larutan pewarna MO, laju fotodegradasi yang diperoleh paling minimal yaitu ~3%. Hal ini menunjukkan adanya kesulitan bagi molekul MO dan senyawa intermediatnya untuk dapat terdegradasi sendiri. Efisiensi nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs diperoleh paling tinggi sebesar 84,5 % daripada TiO<sub>2</sub> murni yang hanya 51,3% setelah 100 menit proses fotodegradasi (Gambar 5 b). Aktivitas fotokatalitik nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs yang lebih tinggi dikaitkan dengan pemisahan pasangan elektron-hole yang ditingkatkan secara signifikan melalui serangkaian mekanisme donor-akseptor elektron dari pita konduksi TiO<sub>2</sub> ke dalam lapisan *graphene* dan nanopartikel perak untuk mencegah rekombinasi pasangan elektron-hole.

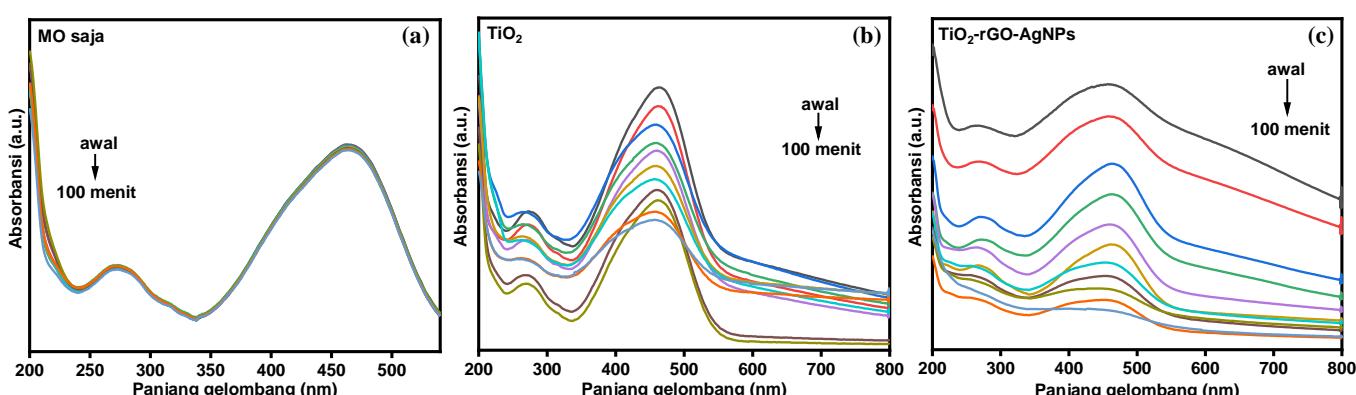
Untuk menghitung kinetika reaksi fotokatalitik MO dengan fotokatalis TiO<sub>2</sub> murni dan nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs maka dilakukan analisis regresi pada orde nol, pertama, dan kedua. Berdasarkan hasil analisis regresi hubungan antara konsentrasi terhadap waktu pada orde nol, pertama, dan kedua pada gambar 6, didapatkan bahwa model reaksi homogen orde pertama semu dapat dipertimbangkan untuk menggambarkan kinetika reaksi yang terjadi karena memiliki nilai  $R^2$  yang paling mendekati 1. Percobaan degradasi dengan penyinaran cahaya UV pada larutan MO yang mengandung fotokatalis memiliki persamaan kinetika reaksi fotokatalisis sebagai berikut:

$$-\frac{dC}{dt} = k_{app}t$$

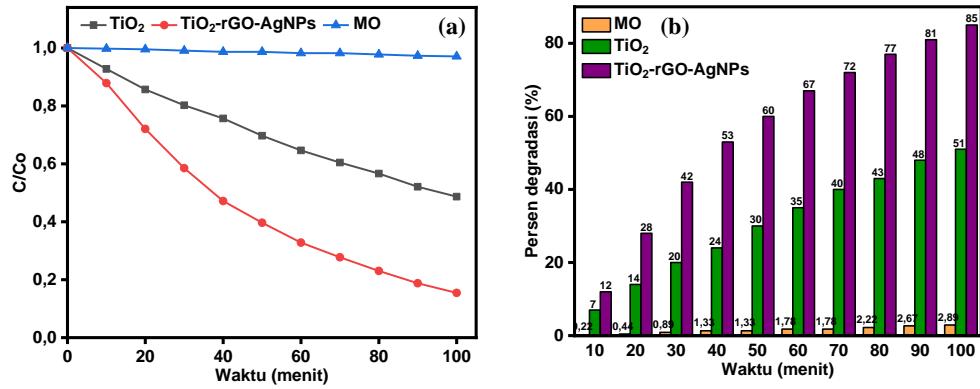
Dengan mengintegrasikan persamaan tersebut (saat  $C = C_0$  dan  $t = 0$ , di mana  $C_0$  adalah konsentrasi awal dalam larutan setelah adsorpsi dalam gelap dan  $t$  adalah waktu reaksi) diperoleh hubungan:

$$\ln\left(\frac{C_0}{C}\right) = k_{app}t$$

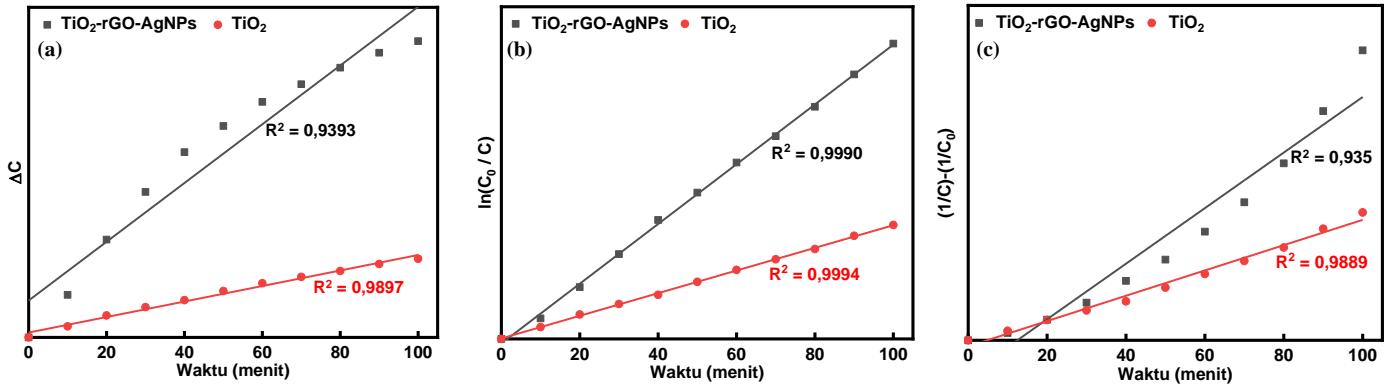
Di mana  $k_{app}$  adalah konstanta laju reaksi orde pertama semu dan besarnya dipengaruhi oleh konsentrasi pewarna. Nilai  $k_{app}$  diperoleh dari gradien analisis regresi dan hasilnya ditampilkan pada tabel 1. Dapat disimpulkan bahwa konstanta laju fotodegradasi MO menjadi 2,6 kali lebih cepat dengan penambahan nanokomposit rGO-AgNPs pada TiO<sub>2</sub> murni.



Gambar 4 kurva degradasi fotokatalitik MO tanpa fotokatalis (a), TiO<sub>2</sub> (b), Nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs (c)



Gambar 5 efisiensi degradasi fotokatalitik MO

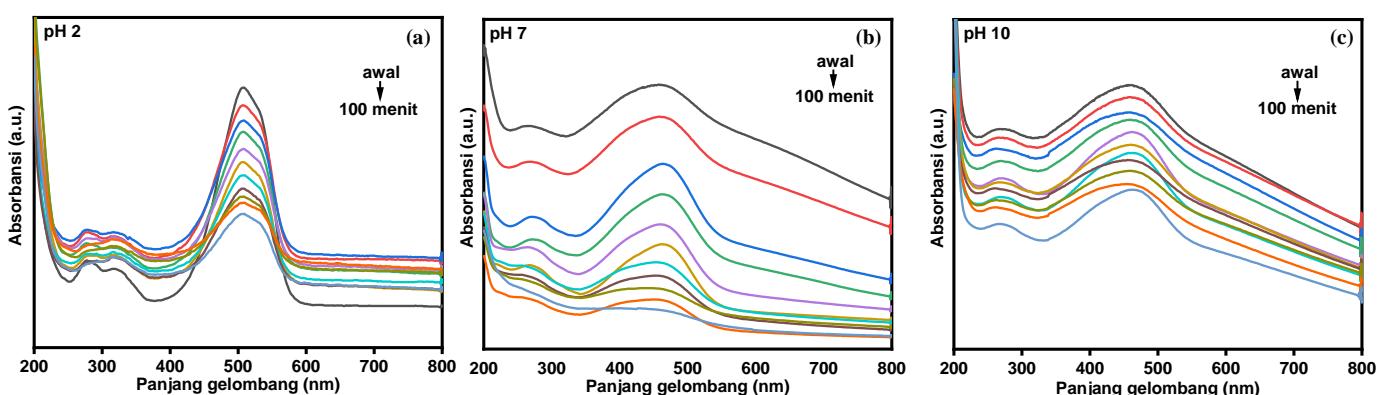


Gambar 6 kinetika degradasi fotokatalitik  $\text{TiO}_2$  dan nanokomposit  $\text{TiO}_2\text{-rGO-AgNPs}$  pada orde nol (a), orde pertama (b), dan orde kedua (c)

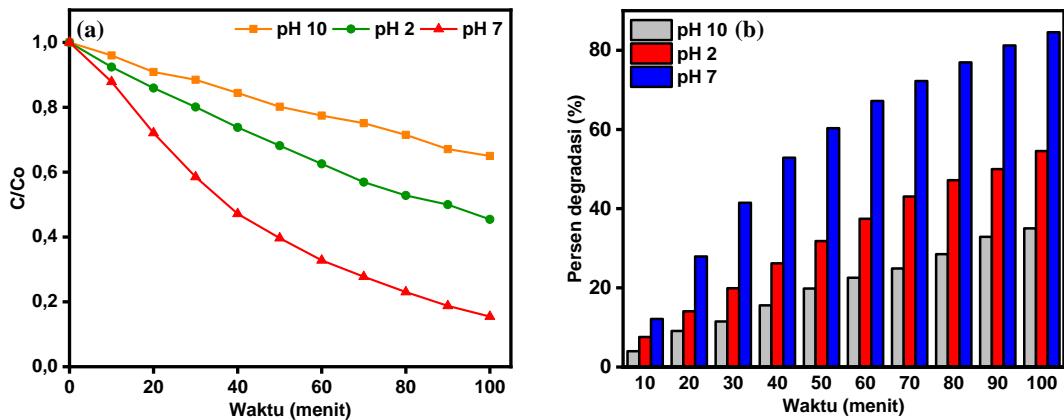
### 3.4 Pengaruh pH

Untuk mengetahui pengaruh pH larutan terhadap efisiensi degradasi fotokatalitik MO, maka dilakukan variasi pH pada fotokatalis  $\text{TiO}_2\text{-rGO-AgNPs}$  yaitu pada pH 2, 7, dan 10 (gambar 7). Berdasarkan spektrum absorpsi UV pada pH netral dan 10 ditemukan adanya dua puncak karakteristik absorpsi MO yang terletak pada 272 nm dan 463 nm. Puncak absorpsi MO bergeser menjadi sekitar 507 nm pada kondisi pH 2 dan munculnya dua puncak dengan intensitas yang lebih rendah di sekitar 277 nm dan 319 nm. Setelah proses degradasi selesai, puncak-puncak karakteristik absorpsi MO terlihat melandai tanpa adanya pergeseran puncak.

Hasil fotodegradasi MO oleh nanokomposit  $\text{TiO}_2\text{-rGO-AgNPs}$  pada beberapa kondisi pH ditampilkan pada gambar 8. Efisiensi pada pH netral diperoleh paling tinggi sebesar 84,5 % dibandingkan pada kondisi pH 2, dan 10 yang masing-masing hanya 54,5%, dan 35% setelah 100 menit proses fotodegradasi. Berdasarkan percobaan ditemukan bahwa kondisi pH dapat mempengaruhi laju fotodegradasi MO dan kondisi pH netral dapat disarankan untuk proses degradasi fotokatalitik MO dengan komposit  $\text{TiO}_2\text{-rGO-AgNPs}$ .



Gambar 7 kurva degradasi fotokatalitik MO pada pH 2 (a), 7 (b), dan 10 (c)

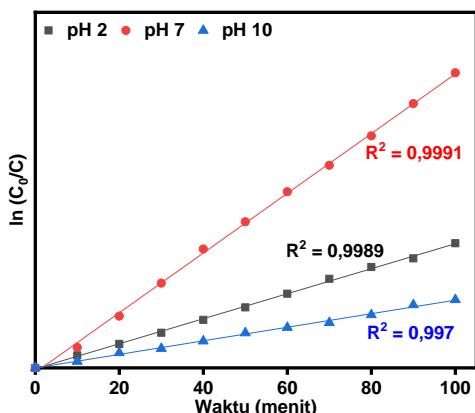


Gambar 8 efisiensi degradasi fotokatalitik MO nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs pada beberapa kondisi pH

Kinetika reaksi fotokatalisis degradasi MO dengan nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs pada beberapa kondisi pH ditampilkan pada [gambar 9](#). Berdasarkan analisis regresi untuk menentukan konstanta laju reaksi orde pertama semu diperoleh pH 7 adalah kondisi yang disarankan karena memiliki nilai yang paling tinggi dibandingkan yang lainnya.

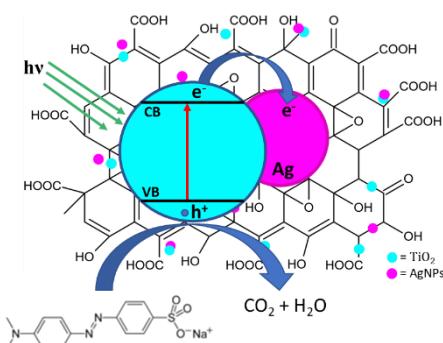
Fotokatalis	pH	R <sup>2</sup>	k × 10 <sup>-3</sup> , Menit <sup>-1</sup>	Eff. degradasi (%)
TiO <sub>2</sub> -rGO-AgNPs	7	0,9990	18,89	84,5
TiO <sub>2</sub> -rGO-AgNPs	2	0,9989	7,92	54,5
TiO <sub>2</sub>	7	0,9990	7,16	51,3
TiO <sub>2</sub> -rGO-AgNPs	10	0,9970	4,29	35

Tabel 1 Kinetika fotodegradasi MO selama 100 menit penyinaran cahaya UV



Gambar 9 kinetika degradasi fotokatalitik nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs pada beberapa kondisi pH

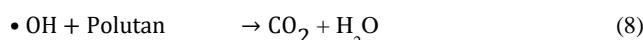
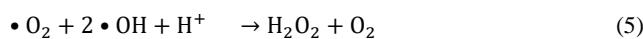
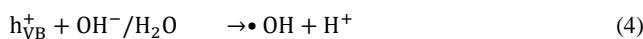
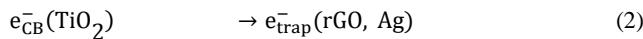
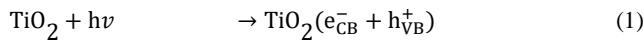
### 3.5 Mekanisme Degradasi Fotokatalitik



Gambar 10 mekanisme degradasi fotokatalitik MO dengan nanokomposit TiO<sub>2</sub>-rGO-AgNPs

Mekanisme degradasi fotokatalitik MO ditunjukkan pada [gambar 10](#). Peningkatan efisiensi fotokatalitik dapat dikaitkan karena adanya interaksi yang sinergis antara Ag, Ti, dan rGO. Pada saat energi foton (hv) yang menyinari permukaan TiO<sub>2</sub> memiliki nilai yang lebih besar atau sama dengan energi celah pita (Eg) TiO<sub>2</sub> ( $hv \geq Eg$ ), maka terjadi proses absorpsi energi foton oleh elektron sehingga elektron ( $e^-$ ) dapat tereksitasi dari pita valensi menuju ke pita konduksi, meninggalkan hole ( $h^+$ ) di pita valensi ([pers. 1](#)). Pasangan elektron-hole yang dihasilkan akan mengalami rekombinasi dengan sangat cepat dalam skala nanodetik [26]. Namun, dengan keberadaan rGO dalam nanokomposit membuat elektron yang telah melewati pita konduksi TiO<sub>2</sub> dapat dengan cepat beralih ke lapisan *graphene* yang sangat baik dalam konduksi listrik [27]. Dalam degradasi fotokatalitik MO, rGO dapat bertindak sebagai akseptor dan transpor elektron karena memiliki luas permukaan yang besar sehingga dapat memfasilitasi migrasi elektron yang dihasilkan oleh cahaya [28]. Keberadaan nanopartikel perak (AgNPs) dalam nanokomposit juga dapat meningkatkan kemampuan fotokatalitik dengan membentuk *Schottky barrier* pada antarmuka Ag dan TiO<sub>2</sub> yang berfungsi sebagai tempat injeksi elektron yang dihasilkan oleh pita konduksi TiO<sub>2</sub>. Elektron yang telah terjebak pada lapisan *graphene* dan Ag ([pers. 2](#)) dapat bereaksi dengan oksigen dan menghasilkan superoksida ([pers. 3](#)). Selain itu *hole* di pita valensi dapat bereaksi dengan air dan menghasilkan hidroksil radikal dan H<sup>+</sup> ([pers. 4](#)). Selanjutnya superoksida (dari [pers. 3](#)) dapat bereaksi dengan H<sup>+</sup> (dari [pers. 4](#)) dan menghasilkan struktur yang terprotonasi, yaitu hidroperoksil radikal yang selanjutnya dapat membentuk senyawa hidrogen peroksida H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ([pers. 5](#)). Hidrogen peroksida dapat tereduksi dan membentuk

hidroksil radikal (*pers.* 6). Polutan organik dapat dihilangkan dengan keberadaan spesies hidroksil radikal selama proses fotokatalisis. Molekul organik dapat diserang oleh hidroksil radikal dan menghasilkan senyawa intermediat (*pers.* 8). Di sisi lain, *hole* dapat mengoksidasi molekul organik secara langsung (*pers.* 7), di mana senyawa intermediat yang dihasilkan ( $R^+$ ) kemudian bereaksi dengan hidroksil radikal untuk menghasilkan produk degradasi akhir seperti  $CO_2$  dan  $H_2O$  yang relatif tidak berbahaya di dalam sistem.



## 4. Kesimpulan

Nanokomposit  $TiO_2$ -rGO-AgNPs telah berhasil disintesis yang dibuktikan berdasarkan pengujian XRD dan UV-Vis dengan munculnya puncak-puncak karakteristik masing-masing material. Berdasarkan pengujian degradasi fotokatalitik MO, efisiensi diperoleh paling tinggi sebesar 84,5% dengan nanokomposit  $TiO_2$ -rGO-AgNPs. Selain itu pH juga ditemukan berpengaruh terhadap laju fotodegradasi dan dapat disarankan untuk menggunakan pH netral agar memperoleh efisiensi yang paling optimal.

## Referensi

- [1] Duman, G. (2021). Preparation of novel porous carbon from hydrothermal pretreated textile wastes: Effects of textile type and activation agent on structural and adsorptive properties. *Journal of Water Process Engineering*, 43(June), 102286. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2021.102286>
- [2] Alghamdi, A. A., Al-Odayni, A. B., Saeed, W. S., Almutairi, M. S., Alharthi, F. A., Aouak, T., & Al-Kahtani, A. (2019). Adsorption of azo dye methyl orange from aqueous solutions using alkali-activated polypyrrole-based graphene oxide. *Molecules*, 24(20). <https://doi.org/10.3390/molecules24203685>
- [3] Xie, S., Huang, P., Kruzic, J. J., Zeng, X., & Qian, H. (2016). A highly efficient degradation mechanism of methyl orange using Fe-based metallic glass powders. *Scientific Reports*, 6(February), 1–10. <https://doi.org/10.1038/srep21947>
- [4] da Silva, W. L., Druzian, D. M., Oviedo, L. R., Muraro, P. C. L., & Oviedo, V. R. (2021). Silver Nanoparticles for Photocatalysis and Biomedical Applications. *InTech*. <https://www.intechopen.com/books/advanced-biometric-technologies/liveness-detection-in-biometrics>
- [5] Guan, S.-H., Zhao, K.-F., Tong, Q., Rao, Q.-X., Cheng, L., Song, W., Zhang, Q.-C., Wang, X.-L., & Song, W.-G. (2021). A review of photocatalytic materials application on nonylphenol degradation. *Environmental Challenges*, 4(March), 100172. <https://doi.org/10.1016/j.envc.2021.100172>
- [6] Krishnamoorthy, K., Veerapandian, M., Yun, K., & Kim, S. (2012). The chemical and structural analysis of graphene oxide with different degrees of oxidation. *Carbon*, 53, 38–49. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2012.10.013>
- [7] Arthi G, P. B., & BD, L. (2015). A Simple Approach to Stepwise Synthesis of Graphene Oxide Nanomaterial. *Journal of Nanomedicine & Nanotechnology*, 06(01), 1–4. <https://doi.org/10.4172/2157-7439.1000253>
- [8] Jurkiewicz, K., Pawlyta, M., & Burian, A. (2018). Structure of Carbon Materials Explored by Local Transmission Electron Microscopy and Global Powder Diffraction Probes. *C*, 4(4), 68. <https://doi.org/10.3390/c4040068>
- [9] Stobinski, L., Lesiak, B., Malolepszy, A., Mazurkiewicz, M., Mierzwka, B., Zemek, J., Jiricek, P., & Bieloshapka, I. (2014). Graphene oxide and reduced graphene oxide studied by the XRD, TEM and electron spectroscopy methods. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 195, 145–154. <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2014.07.003>
- [10] Kavinkumar, T., Varunkumar, K., Ravikumar, V., & Manivannan, S. (2017). Anticancer activity of graphene oxide-reduced graphene oxide-silver nanoparticle composites Journal of Colloid and Interface Science Anticancer activity of graphene oxide-reduced graphene oxide-silver nanoparticle composites. *Journal of Colloid And Interface Science*, 505(December), 1125–1133. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2017.07.002>
- [11] Ray, S. C. (2015). Application and Uses of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide. *Applications of Graphene and Graphene-Oxide Based Nanomaterials*, ii, 39–55. <https://doi.org/10.1016/b978-0-323-37521-4.00002-9>
- [12] Deepi, A., Srikrishna, G., & Nesaraj, A. S. (2018). One pot reflux synthesis of reduced graphene oxide decorated with silver/cobalt oxide: A novel nano composite material for high capacitance applications. *Ceramics International*, 44(16), 20524–20530. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.08.049>
- [13] Madhuri, D. R., Kavyashree, K., Lamani, A. R., Jayanna, H. S., Nagaraju, G., & Mundinamani, S. (2021). Materials Today : Proceedings Reduction of graphene oxide by Phyllanthus Emblica as a reducing agent – A green approach for supercapacitor application. *Materials Today: Proceedings*, xxxx. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2021.06.173>
- [14] Nugraheni, A. Y., Jayanti, D. N., Kurniasari, Soontaranon, S., Rachman Putra, E. G., & Darminto. (2017). Structural Analysis on Reduced Graphene Oxide Prepared from Old Coconut Shell by Synchrotron X-Ray Scattering. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 196(1). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/196/1/012007>
- [15] Pusty, M., Rana, A. K., Kumar, Y., Sathe, V., Sen, S., & Shirage, P. (2016). Synthesis of Partially Reduced Graphene Oxide/Silver Nanocomposite and Its Inhibitive Action on Pathogenic Fungi Grown Under Ambient Conditions. *ChemistrySelect*, 1(14), 4235–4245. <https://doi.org/10.1002/slct.201600783>
- [16] Anandalakshmi, K., Venugopal, J., & Ramasamy, V. (2016). Characterization of silver nanoparticles by green synthesis method using Pedalium murex leaf extract and their antibacterial activity. *Applied Nanoscience (Switzerland)*, 6(3), 399–408. <https://doi.org/10.1007/s13204-015-0449-z>
- [17] Yu, M., Yu, T., Chen, S., Guo, Z., & Seok, I. (2020). A Facile Synthesis of Ag/TiO<sub>2</sub>/rGO Nanocomposites with Enhanced Visible Light Photocatalytic Activity. *ES Materials & Manufacturing*, 64–69. <https://doi.org/10.30919/esmm5f712>
- [18] Arabpour, A., Dan, S., & Hashemipour, H. (2021). Preparation and optimization of novel graphene oxide and adsorption isotherm study of methylene blue. *Arabian Journal of Chemistry*, 14(3), 103003. <https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2021.103003>
- [19] Russo, C., Stanzione, F., Alfè, M., Ciajolo, A., & Tregrossi, A. (2012). Spectral analysis in the UV-visible range for revealing the molecular form of combustion-generated carbonaceous species. *Combustion Science and Technology*, 184(7–8), 1219–1231. <https://doi.org/10.1080/00102202.2012.664315>
- [20] Çiplak, Z., Yıldız, N., & Çalışlı, A. (2014). Investigation of graphene/Ag nanocomposites synthesis parameters for two different synthesis methods. *Fullerenes Nanotubes and Carbon Nanostructures*, 23(4), 361–370. <https://doi.org/10.1080/1536383X.2014.894025>

- [21] Marcano, D. C., Kosynkin, D. V., Berlin, J. M., Sinitskii, A., Sun, Z., Slesarev, A., Alemany, L. B., Lu, W., & Tour, J. M. (2010). Improved synthesis of graphene oxide. *ACS Nano*, 4(8), 4806–4814. <https://doi.org/10.1021/nn1006368>
- [22] Ikram, M., Raza, A., Imran, M., Ul-Hamid, A., Shahbaz, A., & Ali, S. (2020). Hydrothermal Synthesis of Silver Decorated Reduced Graphene Oxide (rGO) Nanoflakes with Effective Photocatalytic Activity for Wastewater Treatment. *Nanoscale Research Letters*, 15(1), 0–10. <https://doi.org/10.1186/s11671-020-03323-y>
- [23] Liu, G. F., Huang, L. J., Wang, Y. X., Tang, J. G., Wang, Y., Cheng, M. M., Zhang, Y., Kipper, M. J., Belfiore, L. A., & Ranil, W. S. (2017). Preparation of a graphene/silver hybrid membrane as a new nanofiltration membrane. *RSC Advances*, 7(77), 49159–49165. <https://doi.org/10.1039/c7ra07904d>
- [24] Mangalam, J., Kumar, M., Sharma, M., & Joshi, M. (2019). High adsorptivity and visible light assisted photocatalytic activity of silver/reduced graphene oxide (Ag/rGO) nanocomposite for wastewater treatment. *Nano-Structures and Nano-Objects*, 17, 58–66. <https://doi.org/10.1016/j.nanoso.2018.11.003>
- [25] Bansal, A., Kumar, A., Kumar, P., Bojja, S., Chatterjee, A. K., Ray, S. S., & Jain, S. L. (2015). Visible light-induced surface initiated atom transfer radical polymerization of methyl methacrylate on titania/reduced graphene oxide nanocomposite. *RSC Advances*, 5(27), 21189–21196. <https://doi.org/10.1039/c4ra15615c>
- [26] Shan, R., Lu, L., Gu, J., Zhang, Y., Yuan, H., Chen, Y., & Luo, B. (2020). Photocatalytic degradation of methyl orange by Ag/TiO<sub>2</sub>/biochar composite catalysts in aqueous solutions. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 114(April), 105088. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2020.105088>
- [27] Doluel, E. C., Kartal, U., Dikici, T., & Yurddaskal, M. (2020). Effect of Ag Content on Photocatalytic Activity of Ag@TiO<sub>2</sub>/rGO Hybrid Photocatalysts. *Journal of Electronic Materials*, 49(6), 3849–3859. <https://doi.org/10.1007/s11664-020-08102-0>
- [28] Nguyen, V. N., Tran, D. T., Nguyen, M. T., Le, T. T. T., Ha, M. N., Nguyen, M. V., & Pham, T. D. (2018). Enhanced photocatalytic degradation of methyl orange using ZnO/graphene oxide nanocomposites. *Research on Chemical Intermediates*, 44(5), 3081–3095. <https://doi.org/10.1007/s11164-018-3294-3>