

PENGARUH PENAMBAHAN *CHELATING AGENTS* (ASAM ASKORBAT, HIDROKSILAMINA, DAN ASAM OKSALAT) DALAM *FENTON-LIKE REACTION* PADA PROSES DEGRADASI METILEN BIRU

Mochamad Reza Zulfani dan Heny Dewajani

Jurusan Teknik Kimia, Politeknik Negeri Malang, Jl. Soekarno Hatta No. 9, Malang 65141, Indonesia
reza.zulfani29@gmail.com ; [heny.dewajani@polinema.ac.id]

ABSTRAK

Perkembangan industri tekstil di Indonesia menyebabkan semakin meningkatnya limbah pewarna yang dihasilkan. Salah satu upaya yang dilakukan dalam penanganan limbah pewarna tekstil jenis metilen biru adalah *Fenton-Like Reaction*. Proses ini dapat mendegradasi zat pewarna organik dengan baik, namun memiliki kekurangan berupa kondisi reaksi yang asam dan dihasilkannya presipitasi ion besi pada saat reaksi. Permasalahan tersebut dapat diatasi melalui penambahan *chelating agents* pada saat reaksi yang dapat mencegah terjadinya presipitasi ion besi dan meningkatkan kemampuan FePO_4 dalam mengkatalis reaksi sehingga reaksi menjadi lebih cepat. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh penambahan *chelating agents* berupa asam askorbat (AA), hidroksilamina (HA), dan asam oksalat (AO) pada *Fenton-Like Reaction* untuk mendegradasi pewarna metilen biru dengan reaktan H_2O_2 dan katalis FePO_4 . *Chelating agents* yang memiliki kemampuan tertinggi dalam mendegradasi metilen biru selanjutnya diteliti pada konsentrasi terbaiknya dengan variasi 0,5; 1; 1,5 dan 2 mmol/L serta variasi pH awal reaksi 3, 5, 7 dan tanpa pengaturan pH awal. Hasil penelitian menunjukkan asam askorbat (AA) merupakan *chelating agents* dengan kemampuan mendegradasi metilen biru tertinggi dengan tingkat degradasi sebesar 99% setelah 1 jam reaksi. Konsentrasi asam askorbat (AA) terbaik dalam reaksi ini adalah sebesar 1 mmol/L dengan pH awal reaksi 3. Selain itu, penelitian ini juga menunjukkan bahwa dengan penambahan *chelating agents*, proses *Fenton-Like Reaction* dapat dilakukan pada pH yang asam dan juga pada pH netral.

Kata kunci: asam askorbat, asam oksalat, chelating agents, fenton-like reaction, hidroksilamina.

ABSTRACT

The development of the textile industry in Indonesia has led to an increase in the production of dye waste. The Fenton-Like Reaction is one of the efforts made in handling methylene blue textile dye waste. This process can degrade organic dyes well but has drawbacks in the form of acidic reaction conditions and the production of iron ion precipitation during the reaction. This problem can be overcome by adding chelating agents during the reaction which can prevent precipitation of iron ions and increase the ability of FePO_4 to catalyze the reaction so that the reaction becomes faster. This study aims to determine the effect of adding chelating agents in the form of ascorbic acid (AA), hydroxylamine (HA), and oxalic acid (AO) in the Fenton-Like Reaction to degrade methylene blue dye with H_2O_2 reactants and FePO_4 catalysts. Chelating agents that have the highest ability to degrade methylene blue were then studied at their best concentrations with a variation of 0.5; 1 ; 1.5 ; and 2 mmol/L as well as variations in the initial pH of the reaction 3, 5, 7 and without initial pH adjustment. The results showed that ascorbic acid (AA) is a chelating agent with the highest ability to degrade methylene blue with a degradation rate of 99% after 1 hour of reaction. The best concentration of ascorbic acid (AA) in this



reaction is 1 mmol/L with an initial reaction pH of 3. In addition, this study also shows that by adding chelating agents, the Fenton-Like Reaction process can be carried out at an acidic pH and also at a pH neutral.

Keywords: ascorbic acid, oxalic acid, chelating agents, fenton-like reaction, hidroxylamine.

1. PENDAHULUAN

Dewasa ini banyak dilakukan pengembangan terhadap proses penanganan limbah organik. Salah satu proses yang banyak dikembangkan adalah *Fenton-Like Reaction*. *Fenton-Like Reaction* sendiri termasuk ke dalam reaksi oksidasi lanjutan (*Advanced Oxidation Process*)[1]. Dalam reaksi ini, dapat digunakan katalis berupa *iron-bearing minerals* seperti hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) [2]. Munoz dkk (2015) juga berhasil menggunakan magnetite (Fe_3O_4) sebagai katalis dalam reaksi oksidasi heterogen Fenton [3]. Selain itu, goetite ($\alpha\text{-FeOOH}$), dan FePO_4 juga memiliki kemampuan sebagai katalis untuk menghasilkan radikal hidroksil dari senyawa hidrogen peroksida dalam *Fenton-Like Reaction* [4]. Proses *Fenton-Like Reaction* memiliki potensi yang cukup menjanjikan untuk mengolah limbah pewarna organik apabila melihat kondisi saat ini di mana industri percetakan dan pewarnaan mengalami peningkatan produksi. Menurut Sistem Informasi Pengelolaan Sampah Nasional (SIPSN) Kementerian Lingkungan Hidup dan Kehutanan, Indonesia menghasilkan 2,3 juta ton sampah tekstil pada tahun 2021, atau 12% dari sampah rumah tangga. Pertumbuhan industri percetakan dan pewarnaan sebanding dengan produksi limbah pewarna organik. Konsentrasi pewarna dalam industri tekstil rata-rata dunia sebesar 700 mg/L [5]. Di Indonesia sendiri, pewarna organik banyak digunakan pada industri pembuatan batik. Limbah batik mengandung zat warna rodamin B mencapai 0,344 ppm, metilen biru mencapai 0,179 ppm dan metil orange mencapai 0,779 ppm. Nilai tersebut berada diatas ambang batas standar nasional untuk air limbah yaitu sebesar 0,1 ppm [6]. Metilen biru dapat menimbulkan beberapa efek seperti iritasi saluran pencernaan jika tertelan, menimbulkan sianosis jika terhirup, dan iritasi pada kulit jika tersentuh oleh kulit [7]. Selain itu, limbah metilen biru dapat mengakibatkan kekeruhan pada air dan meningkatnya *Chemical Oxygen Demand* [8].

Fenton-Like Reaction telah mendapat banyak perhatian karena kemampuan oksidasi katalitiknya yang baik, kemudahan penggunaan kembali katalis, dan tidak adanya polusi sekunder berupa lumpur besi. Namun, proses ini memiliki kelemahan yaitu kondisi reaksi yang asam (3-5) dan dihasilkannya presipitasi ion besi [9]. Selain itu, proses ini kurang memuaskan karena alasan-alasan berikut: (1) proses perpindahan massa yang lambat pada antarmuka *iron (hydro)oxides-solution*, termasuk difusi dari H_2O_2 dan polutan target ke permukaan katalis, adsorpsi reaktan dan desorpsi produk; (2) adsorpsi kompetitif dari H_2O_2 dan polutan target; (3) pengeringan permukaan di mana dihasilkan radikal hidroksil oleh Fe^{2+} dan konsentrasi H_2O_2 di dekat permukaan; (4) generasi situs aktif Fe^{2+} yang tidak mencukupi [10].

Untuk mengatasi permasalahan *Fenton-Like Reaction* tersebut, pengembangan proses tersebut telah dilakukan akhir-akhir ini. Cara yang secara efektif dapat meningkatkan waktu keberadaan Fe^{2+} dan Fe^{3+} terlarut adalah dengan menggunakan agen peng kompleks atau sering disebut *chelating agents* [11]. *Chelating agents* adalah zat dengan beberapa situs koordinasi dan dapat membentuk ikatan dengan ion logam seperti Fe^{2+} atau Fe^{3+} [11], [12]. Selain dapat meningkatkan keberadaan ion besi terlarut, penambahan *chelating agents*

dapat meningkatkan rentang pH berlangsungnya reaksi, membantu dalam proses transfer elektron, dan mencegah presipitasi besi [13]. Beberapa contoh *chelating agents* adalah asam askorbat (AA), hidroksilamina (HA), dan asam oksalat (AO). Yuan (2021) mengkaji degradasi metilen jingga menggunakan *chelating agents* asam askorbat (AA) dengan pH awal reaksi sebesar 6,5 [14]. Zhang (2022) berhasil mendegradasi antibiotik sulfamethazine pada reaksi *Heterogenous-Homogenous Coupled Fenton* menggunakan katalis FePO₄ [15]. Zhou (2017) dalam penelitiannya mengatakan bahwa asam oksalat telah berhasil mendegradasi Bisphenol-A pada rentang pH 4,5 sampai 5,5 [16]. Sedangkan, penelitian yang membandingkan pengaruh tiga jenis *chelating agents* (asam askorbat, hidroksilamina, dan asam oksalat) pada *Fenton-Like Reaction* degradasi metilen biru belum pernah diteliti sebelumnya.

Penanganan limbah metilen biru yang tidak tepat dapat mengakibatkan pencemaran. Pembuangan limbah secara langsung di perairan dapat menurunkan kualitas air dan mengancam keseimbangan ekosistem karena dapat menyebabkan perubahan warna air serta menghalangi cahaya yang masuk ke dasar perairan. Oleh karena itu, untuk menyelesaikan permasalahan tentang limbah metilen biru perlu dilakukan penelitian untuk mengetahui pengaruh penambahan *chelating agents* berupa asam askorbat (AA), hidroksilamina (HA), dan asam oksalat (AO) pada *Fenton-Like Reaction* untuk mendegradasi pewarna metilen biru dengan reaktan H₂O₂ dan katalis FePO₄.

2. METODOLOGI PENELITIAN

Penelitian ini menggunakan metode kuantitatif eksperimental di mana data yang didapatkan berupa angka-angka dan merupakan hasil eksperimen untuk memperoleh informasi yang terstruktur. Data yang didapat berupa nilai absorbansi dari alat *UV-Visible Spectrophotometer* selanjutnya dianalisis menggunakan *microsoft excel* untuk mengetahui tingkat penurunan konsentrasi (degradasi) dari metilen biru. Selanjutnya, data absorbansi diplot dalam bentuk grafik hubungan antara % degradasi terhadap waktu. Variabel-variabel pada penelitian ini adalah jenis *chelating agents* yang digunakan (asam askorbat, hidroksilamina, dan asam oksalat), konsentrasi *chelating agents* (0,5; 1; 1,5 dan 2 mmol/L) serta variasi pH awal reaksi (3, 5, 7 dan tanpa pengaturan pH awal). Penelitian ini dilakukan di laboratorium *Green Biotechnology*, Ming Chi University and Technology, Taiwan.

2.1. Alat dan Bahan

Magnetic stirrer, *Syringe* dan *syringe filter* 22 µm, *UV-Visible Spectrophotometer*, dan pH meter. Untuk bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah kristal metilen biru 100% PA, serbuk besi III fosfat (FePO₄) PA, hidrogen peroksida H₂O₂ 33% PA, *deionized water*, kertas laboratorium, larutan asam sulfat pekat H₂SO₄ 98% PA, kristal *pure* natrium hidroksida (NaOH), asam askorbat (C₆H₈O₆), *extra pure* hidroksilamina (NH₂OH), kristal asam oksalat dihidrat (H₂C₂O₄.2H₂O).

2.2. *Fenton-Like Reaction*

Menimbang kristal metilen biru sebanyak 3 mg, memasukkan kristal metilen biru ke dalam gelas beker 250 mL, menambahkan *deionized water* sebanyak 100 mL, mengaduk larutan menggunakan *magnetic stirrer*, memasukkan katalis FePO₄, menambahkan *chelating agents*, menyesuaikan pH larutan dengan menambahkan larutan H₂SO₄ atau NaOH, mengambil sampel larutan mula-mula sebanyak 2 mL menggunakan *Syringe* dan

Syringe Filter 22 μm , menentukan nilai absorbansi larutan mula-mula menggunakan *UV-Visible Spectrophotometer* pada panjang gelombang 600 nm, menambahkan larutan H_2O_2 , mengambil sampel tiap 10 menit selama 1 jam sebanyak 2 mL menggunakan *Syringe* dan *Syringe Filter* 22 μm dan tiap sampel dianalisis menggunakan *UV-Visible Spectrophotometer* pada panjang gelombang 600 nm.

2.3. Analisis % Degradasi Metilen Biru

Untuk mengetahui tingkat degradasi metilen biru pada *Fenton-Like Reaction* pada masing-masing penambahan *chelating agents* digunakan alat berupa *UV-Visible spectrophotometer*. Perhitungan dilakukan menggunakan rumus:

$$D = \frac{A_0 - A_n}{A_0} \times 100\% \quad (1)$$

Keterangan:

D = Tingkat degradasi metilen biru (%)

A_0 = Absorbansi sampel metilen biru mula-mula atau waktu ke-0

A_n = Absorbansi sampel metilen biru pada saat waktu ke-n

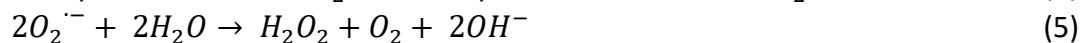
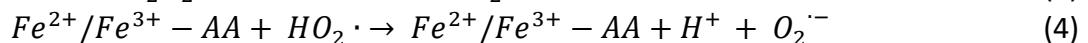
3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Pengaruh Penambahan *Chelating Agents* pada Proses *Fenton-Like Reaction*

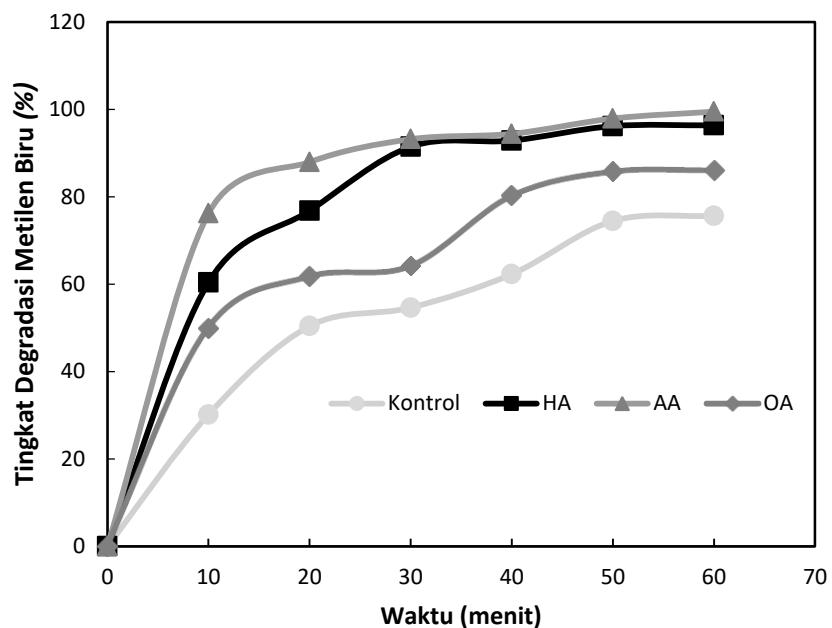
Penelitian yang telah dilakukan menggunakan reaktor tipe batch berskala 250 mL menggunakan pengadukan dari *magnetic stirrer*. Kondisi operasi reaksi berada pada suhu ruang dan tekanan atmosfer. Penelitian dilakukan menggunakan 3 macam jenis *chelating agents* yaitu asam askorbat (AA), hidroksilamina (HA), dan asam oksalat (AO). Ketiga *chelating agents* tersebut ditambahkan pada larutan metilen biru dengan konsentrasi yang sama yaitu 1 mmol/L untuk selanjutnya dibandingkan dengan tanpa pemberian *chelating agents*. Setelah reaksi dimulai, dilakukan sampling setiap 10 menit dalam rentang waktu 1 jam reaksi dimulai dari menit ke-0 reaksi. Pengujian degradasi metilen biru dilakukan menggunakan *UV-Visible Spectrophotometer* pada nilai panjang gelombang 600 nm. Panjang gelombang maksimal tersebut didapatkan dari percobaan pendahuluan. Nilai absorbansi yang didapatkan digunakan untuk menentukan tingkat degradasi metilen biru.

Gambar 1 menunjukkan pengaruh penambahan *chelating agents* pada proses *Fenton-Like Reaction*. Tingkat keasaman (pH) mula-mula reaksi dibuat sama yaitu 3 dengan konsentrasi metilen biru 30 mg/L, katalis 400 mg/L, dan konsentrasi H_2O_2 sebesar 5 mmol/L. Pada gambar tersebut, penambahan *chelating agents* berupa asam askorbat, hidroksilamina dan asam oksalat dapat meningkatkan laju degradasi metilen biru. Pada penambahan asam askorbat dan hidroksilamina, keduanya mampu mendegradasi metilen biru lebih dari 85% dalam waktu kurang dari 30 menit. Hal tersebut dikarenakan *chelating agents* tersebut dapat meningkatkan siklus ion dalam hal ini Fe^{3+} . Peningkatan produksi Fe^{3+} akan meningkatkan radikal hidroksil yang akan mendegradasi metilen biru menjadi molekul air, oksigen, karbon dioksida, dan molekul organik sederhana. Asam askorbat menjadi *chelating agents* yang terbaik dalam penelitian ini karena mampu mendegradasi metilen biru lebih dari 75% hanya dalam waktu 10 menit. Asam askorbat akan membentuk kompleks dengan Fe^{3+} yang akan mempercepat transfer elektron,

memperbaiki pembentukan kompleks Fe^{2+} dari reduksi Fe^{3+} dan menurunkan presipitasi dari ion Fe^{3+} . Terakhir, adanya asam askorbat dapat membentuk lebih banyak produk reaktif seperti O_2^- dan O_2 reaktif yang mana lebih selektif dalam mengoksidasi grup kaya elektron pada komponen organik [17]. Di bawah ini merupakan reaksi yang terjadi selama proses *Fenton-Like Reaction* menggunakan *chelating agents* berupa asam askorbat (2-5)[14]:



Hasil sedikit berbeda ditunjukkan pada perlakuan penambahan asam oksalat. Tingkat degradasi pada sistem $\text{FePO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ /asam oksalat tetap lebih tinggi jika dibandingkan dengan sistem tanpa penambahan *chelating agents* namun lebih rendah jika dibandingkan dengan sistem $\text{FePO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ /asam askorbat dan $\text{FePO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ /hidroksilamina. Tingkat degradasi dalam 30 menit pertama reaksi yaitu sebesar 64%. Hal ini dimungkinkan karena penambahan asam oksalat pada katalis berbasis besi akan menyebabkan pembentukan *photoactive complex* $[\text{Fe}(\text{C}_2\text{O}_4)_3]^{3-}$ [18]. Kompleks ini akan menyebabkan ion besi lebih sedikit memproduksi radikal hidroksil karena akan lebih memilih membentuk kompleks ion tersebut. Sebenarnya kompleks tersebut dapat meningkatkan degradasi zat pewarna pada proses *Fenton-Like Reaction*, namun karena penelitian dilakukan tidak menggunakan perlakuan cahaya tampak, tingkat degradasi pada penelitian ini pun kurang maksimal.



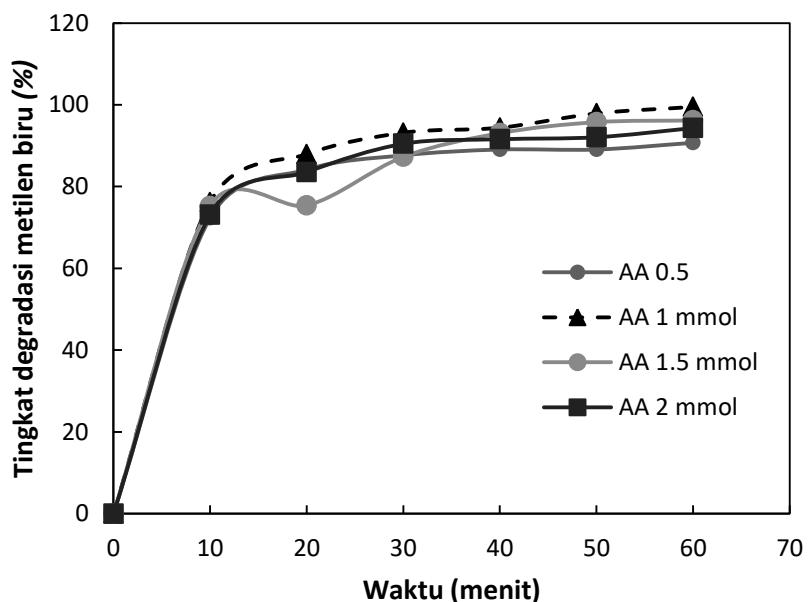
Gambar 1. Pengaruh tiga jenis *chelating agents* terhadap degradasi metilen biru

3.2 Konsentrasi Terbaik Asam Askorbat Sebagai *Chelating Agents*

Chelating agents yang memiliki performa terbaik pada reaksi sebelumnya yaitu asam askorbat selanjutnya dianalisis konsentrasi terbaiknya dalam mendegradasi metilen biru

pada proses *Fenton-Like Reaction*. Penelitian dilakukan dengan memvariasikan konsentrasi yaitu sebesar 0,5; 1; 1,5; dan 2 mmol/L pada kondisi pH awal reaksi 3, konsentrasi metilen biru 30 mg/L, dan konsentrasi H₂O₂ sebesar 5 mmol/L.

Gambar 2 menunjukkan pengaruh konsentrasi asam askorbat terhadap tingkat degradasi metilen biru. Gambar tersebut memperlihatkan terjadi peningkatan % degradasi dari konsentrasi 0,5 ke 1 mmol/L dalam waktu 60 menit reaksi. Hal ini disebabkan karena meningkatnya konsentrasi asam askorbat akan meningkatkan kemampuan *ion dissolution* dari Fe³⁺. Namun, peningkatan dosis diatas 1 mmol/L menurunkan degradasi metilen biru. Hal ini terjadi karena jumlah asam askorbat yang berlebih dalam sistem tersebut akan berkompetisi dengan metilen biru dalam pembentukan radikal hidroksil [14]. Oleh karena itu, konsentrasi terbaik untuk asam askorbat adalah 1 mmol/L.

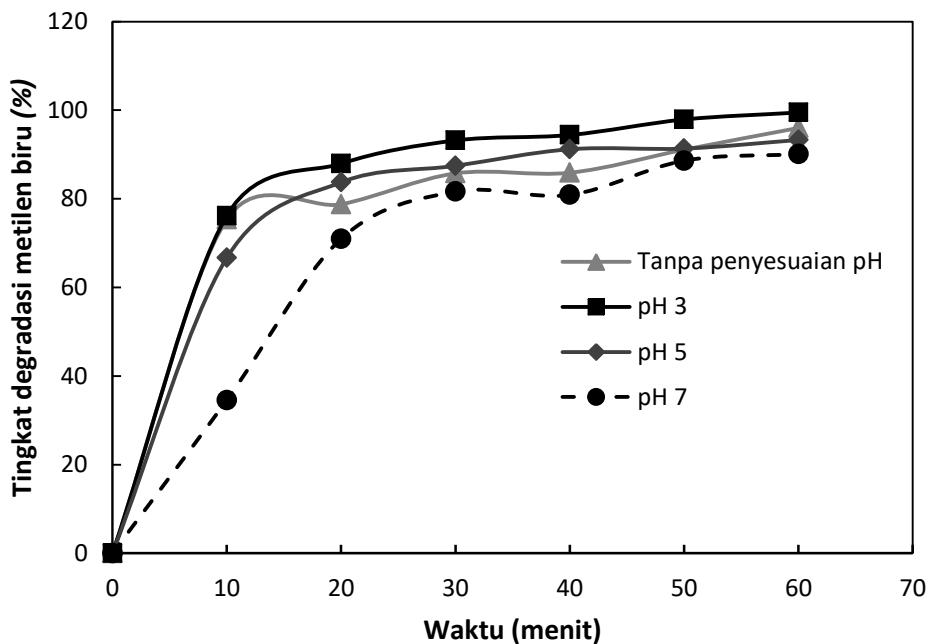


Gambar 2. Pengaruh konsentrasi asam askorbat terhadap degradasi metilen biru

3.2 Rentang pH *Fenton-Like Reaction* dengan Penambahan *Chelating Agents*

Salah satu kelemahan *Fenton-Like Reaction* adalah kondisi operasi terbaiknya ada pada pH asam. Larutan metilen biru sendiri berada pada rentang pH yang netral, sehingga apabila diinginkan pengondisian pH menjadi asam, diperlukan penambahan zat yang dapat menurunkan pH seperti asam klorida atau asam sulfat yang tentunya apabila diaplikasikan ke dalam industri akan meningkatkan biaya. Selain itu, pH rendah akan meningkatkan salinitas limbah yang telah diolah, pembentukan lumpur, dan menyebabkan pelepasan beberapa gas ke lingkungan dengan adanya sulfida dan sianida. Lebih jauh lagi, potensi mobilisasi logam beracun dapat terjadi pada air hasil *Fenton Reaction* pH rendah [9]. Pada penelitian ini juga dilakukan penyelidikan mengenai pengaruh pH awal reaksi terhadap tingkat degradasi metilen biru dengan penambahan *chelating agents* berupa asam askorbat. Variasi pH yang digunakan yaitu sebesar 3, 5, 7, dan tanpa pengaturan pH awal. Untuk mengatur nilai pH awal reaksi, digunakan larutan HCl dan NaOH 0,25 M. Gambar 3 memperlihatkan bahwa proses degradasi metilen biru

dapat dilakukan pada rentang pH 3 hingga 7, namun tingkat degradasi paling baik tetap terjadi pada pH yang semakin rendah. Hal ini dikarenakan larutan yang semakin asam akan meningkatkan produksi radikal hidroksil sehingga penyerangan molekul pewarna organik menjadi lebih cepat [19]. Pada pH tinggi, potensial oksidasi radikal hidroksil menurun, menghasilkan penurunan degradasi metilen biru. Pada penelitian ini, degradasi masih dapat terjadi pada pH 7, di mana degradasi mencapai 75% pada menit ke 30 reaksi.



Gambar 3. Pengaruh pH awal reaksi terhadap degradasi metilen biru

4. KESIMPULAN DAN SARAN

Penambahan *chelating agents* pada proses *Fenton-Like Reaction* dapat meningkatkan tingkat degradasi pada metilen biru. Dari tiga jenis *chelating agents* yang digunakan, asam askorbat merupakan *chelating agents* terbaik dalam mendegradasi Metilen Biru dengan tingkat degradasi 90% pada 30 menit pertama reaksi. Konsentrasi asam askorbat yang optimal untuk penelitian yang dilakukan adalah 1 mmol/L. Tingkat degradasi tertinggi reaksi dicapai pada pH awal reaksi 3 (asam). Meskipun demikian, reaksi juga dapat berjalan pada pH 7 (netral) dengan tingkat degradasi mencapai 80% dalam waktu 50 menit.

Adapun saran untuk penelitian yang akan datang agar terdapat lebih banyak lagi penelitian mengenai pengaruh jenis *chelating agents* lain pada proses *Fenton-Like Reaction*. Lebih lanjut, diharapkan ada lebih banyak penelitian tentang degradasi jenis pewarna lain *chelating agents* asam askorbat dalam *Fenton-Like Reaction* menggunakan seperti *Azo-black*, *Rhodamine-B*, atau metilen jingga. Penelitian pada bidang tersebut akan dapat memperkaya khazanah pengetahuan berkaitan dengan pengolahan limbah dan pada akhirnya akan memberikan dampak positif dalam kelestarian alam.

REFERENSI

- [1] Y. Gao, W. Zhu, J. Liu, P. Lin, J. Zhang, dan T. Huang, "Mesoporous Sulfur-doped CoFe₂O₄ as a New Fenton Catalyst for the Highly Efficient Pollutants Removal," *Appl Catal B*, vol. 295, hlm. 120273, 2021, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2021.120273>.

- [2] X. Nie, G. Li, S. Li, Y. Luo, W. Luo, dan Q. Wan, "Highly Efficient Adsorption and Catalytic Degradation of Ciprofloxacin by a Novel Heterogeneous Fenton Catalyst of Hexapod-like Pyrite Nanosheets Mineral Clusters," *Appl Catal B*, vol. 300, hlm. 120734, 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2021.120734>.
- [3] M. Munoz, Z. M. de Pedro, J. A. Casas, dan J. J. Rodriguez, "Preparation of Magnetite-based Catalysts and Their Application in Heterogeneous Fenton Oxidation – A Review," *Appl Catal B*, vol. 176–177, hlm. 249–265, 2015, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2015.04.003>.
- [4] Y. Shi, X. Wang, X. Liu, C. Ling, W. Shen, dan L. Zhang, "Visible Light Promoted Fe₃S₄ Fenton Oxidation of Atrazine," *Appl Catal B*, vol. 277, hlm. 119229, 2020, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2020.119229>.
- [5] P. Pal, "Chapter 6 - Industry-Specific Water Treatment: Case Studies," dalam *Industrial Water Treatment Process Technology*, P. Pal, Ed., Butterworth-Heinemann, 2017, hlm. 243–511. doi: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-810391-3.00006-0>.
- [6] D. W. Dwiasi, T. Setyaningtyas, dan K. Riyani, "Penurunan Kadar Metilen Biru dalam Limbah Batik Sokaraja Menggunakan Sistem Fe₂O₃-H₂O₂-UV," *Jurnal Rekayasa Kimia & Lingkungan*, vol. 13, no. 1, hlm. 78–86, 2018.
- [7] O. Hamdaoui dan M. Chiha, "Removal of Methylene Blue from Aqueous Solutions by Wheat Bran," *Acta Chim Slov*, vol. 54, hlm. 407–418, Jan 2007.
- [8] M. Chethana, L. G. Sorokhaibam, V. M. Bhandari, S. Raja, dan V. V Ranade, "Green Approach to Dye Wastewater Treatment Using Biocoagulants," *ACS Sustain Chem Eng*, vol. 4, no. 5, hlm. 2495–2507, Mei 2016, doi: [10.1021/acssuschemeng.5b01553](https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.5b01553).
- [9] Y. Zhu, R. Zhu, Y. Xi, J. Zhu, G. Zhu, dan H. He, "Strategies for Enhancing the Heterogeneous Fenton Catalytic Reactivity: A Review," *Appl Catal B*, vol. 255, hlm. 117739, 2019, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2019.05.041>.
- [10] J. He, X. Yang, B. Men, dan D. Wang, "Interfacial Mechanisms of Heterogeneous Fenton Reactions Catalyzed by Iron-based Materials: A Review," *Journal of Environmental Sciences*, vol. 39, hlm. 97–109, 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jes.2015.12.003>.
- [11] E. Lipczynska-Kochany dan J. Kochany, "Effect of Humic Substances on the Fenton Treatment of Wastewater at Acidic and Neutral pH," *Chemosphere*, vol. 73, no. 5, hlm. 745–750, 2008, doi: <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2008.06.028>.
- [12] J. J. Pignatello, E. Oliveros, dan A. MacKay, "Advanced Oxidation Processes for Organic Contaminant Destruction Based on the Fenton Reaction and Related Chemistry," *Crit Rev Environ Sci Technol*, vol. 36, no. 1, hlm. 1–84, Jan 2006, doi: [10.1080/10643380500326564](https://doi.org/10.1080/10643380500326564).
- [13] D. Yuan, C. Zhang, S. Tang, M. Sun, Y. Zhang, dan Y. Rao, "Fe³⁺-sulfite Complexation Enhanced Persulfate Fenton-like Process for Antibiotic Degradation Based on Response Surface Optimization," *Science of The Total Environment*, vol. 727, hlm. 138773, 2020, doi: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.138773>.
- [14] D. Yuan, C. Zhang, S. Tang, Z. Wang, Q. Sun, dan X. Zhang, "Ferric Ion-ascorbic Acid Complex Catalyzed Calcium Peroxide for Organic Wastewater Treatment: Optimized by Response Surface Method," *Chinese Chemical Letters*, vol. 32, no. 11, hlm. 3387–3392, 2021, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cclet.2021.04.050>.
- [15] H. Zhang, L. Li, N. Chen, H. Ben, G. Zhan, dan H. Sun, "Hydroxylamine Enables Rapid Heterogeneous-Homogeneous Coupled Fenton Sulfamethazine Degradation on Ferric Phosphate," *Appl Catal B*, vol. 312, hlm. 121410, 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2022.121410>.
- [16] Y. Zhou, X. Fang, T. Wang, Y. Hu, dan J. Lu, "Chelating Agents Enhanced CaO₂ Oxidation of Bisphenol A Catalyzed by Fe³⁺ and Reuse of Ferric Sludge as a Source of Catalyst," *Chemical*

- Engineering Journal, vol. 313, hlm. 638–645, 2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2016.09.111>.
- [17] M. Huang, W. Xiang, C. Wang, T. Zhou, J. Mao, dan X. Wu, "Ultrafast O₂ Activation by Copper Oxide for 2,4-dichlorophenol Degradation: The Size-dependent Surface Reactivity," *Chinese Chemical Letters*, vol. 31, no. 10, hlm. 2769–2773, 2020, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cclet.2020.06.040>.
- [18] S.-Q. Liu, L.-R. Feng, N. Xu, Z.-G. Chen, dan X.-M. Wang, "Magnetic Nickel Ferrite as a Heterogeneous Photo-fenton Catalyst for the Degradation of Rhodamine B in the Presence of Oxalic Acid," *Chemical Engineering Journal*, vol. 203, hlm. 432–439, 2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2012.07.071>.
- [19] Q. Zhang, X. Li, Q. Wang, dan S. Wang, "Low-Temperature Solid-State Synthesis of FePO₄ as a Heterogeneous Fenton-Like Catalyst for the Degradation of Methyl Blue," *J Appl Spectrosc*, vol. 89, no. 1, hlm. 170–176, 2022, doi: 10.1007/s10812-022-01340-6.