

# BAB I

## PENDAHULUAN

### I.1 Latar Belakang

Pencemaran perairan akibat limbah industri, khususnya yang mengandung pewarna, menjadi permasalahan lingkungan yang serius karena sifatnya yang persisten dan berbahaya. Umumnya, limbah pewarna berasal dari industri makanan, farmasi, dan tekstil (Oladoye *dkk.*, 2022). Salah satu pewarna yang banyak digunakan adalah *crystal violet*, yaitu senyawa trifenilmetana yang bersifat toksik, mutagenik, karsinogenik, serta memiliki stabilitas struktur aromatik yang tinggi sehingga sulit terdegradasi secara alami (Aryani *dkk.*, 2025). Hal ini menunjukkan bahwa metode pengolahan limbah tidak cukup hanya memindahkan polutan, tetapi harus mampu memecah struktur molekulnya secara efektif.

Metode konvensional telah dilakukan untuk mengatasi pencemaran *crystal violet*, seperti filtrasi membran, adsorpsi, osmosis balik, dan presipitasi. Umumnya metode konvensional tersebut hanya memindahkan polutan dan berpotensi menghasilkan limbah sekunder (Periyasamy, 2025). Fotokatalisis berbasis semikonduktor berkembang sebagai alternatif yang lebih berkelanjutan karena mampu mendegradasi senyawa organik secara langsung melalui reaksi redoks. Hal ini menunjukkan bahwa pendekatan berbasis transformasi kimia lebih relevan dibandingkan metode pemisahan.

Salah satu material yang banyak dikembangkan dalam fotokatalisis yaitu *graphitic carbon nitride* (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), semikonduktor polimer bebas logam tipe-*n* dengan struktur berlapis 2D yang tersusun melalui hibridisasi *sp*<sup>2</sup> antara atom karbon dan nitrogen, terikat melalui gaya Van der Waals, dan memiliki celah pita sempit (2,7 eV) yang mampu menyerap panjang gelombang < 450 nm dalam spektrum matahari (Wen *dkk.*, 2017). Kemampuannya untuk menyerap cahaya tampak, memiliki stabilitas kimia dan termal yang tinggi, serta struktur yang mudah dimodifikasi merupakan keunggulan yang membuatnya cocok untuk aplikasi fotokatalisis (Singh *dkk.*, 2025).

Efisiensi fotokatalitik  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  masih terbatas akibat tingginya laju rekombinasi pasangan lubang-elektron, terbatasnya situs aktif pada permukaan, dan sempitnya rentang penyerapan cahaya tampak. Untuk mengatasi hal tersebut, berbagai strategi telah dikembangkan, seperti modifikasi celah pita, modifikasi struktur nanomaterial, pembentukan cacat terkontrol, penggunaan ko-katalis, dan pembentukan *heterojunction* (Song *dkk.*, 2021). Salah satu strategi yang terbukti efektif adalah doping unsur (logam dan nonlogam) untuk mengubah struktur elektronik dan meningkatkan penyerapan cahaya tampak (Hou *dkk.*, 2021). Doping anion seperti fosfor (P), sulfur (S), dan oksigen (O) ke dalam jaringan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  terbukti mampu memperluas respons terhadap cahaya tampak dan mengurangi rekombinasi lubang-elektron (Majidi *dkk.*, 2023). Di antara ketiga unsur tersebut, doping oksigen menunjukkan hasil paling efektif karena dapat meningkatkan waktu hidup pembawa muatan yang tereksitasi foton selama proses fotokatalitik, sehingga mengurangi rekombinasi muatan untuk meningkatkan aktivitas fotokatalitik (Pandi *dkk.*, 2022). Doping oksigen juga terbukti menurunkan energi celah pita dari 2,7 eV menjadi sekitar 2,34 eV, sehingga memperluas penyerapan cahaya tampak hingga 620 nm (Hasija *dkk.*, 2022). Hal ini menunjukkan bahwa doping oksigen tidak hanya berperan dalam memperluas serapan cahaya, tetapi juga dalam meningkatkan efisiensi pemisahan muatan, meskipun peningkatan ini masih perlu didukung oleh strategi lain untuk hasil yang lebih optimal.

Selain melalui doping, peningkatan efisiensi  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  juga dapat dicapai dengan membentuk komposit *heterojunction* menggunakan *metal-organic frameworks* (MOFs). MOFs merupakan material berpori yang tersusun dari gugus logam atau ion logam yang dihubungkan oleh ligan organik, menghasilkan struktur dengan luas permukaan tinggi dan banyak situs aktif katalitik. Berbagai MOFs berbasis logam seperti Cu, Zr, Zn, dan Fe telah banyak dipelajari sebagai aplikasi fotokatalisis. Di antara jenis tersebut, MOFs berbasis Fe, khususnya  $\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$ , menunjukkan kemampuan respons yang sangat baik terhadap cahaya tampak dan telah diterapkan dalam degradasi pewarna (Chen *dkk.*, 2021).

$\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  merupakan MOFs dengan gugus  $-\text{NH}_2$  dan  $\text{Fe-O}$  yang melimpah, yang dapat tereksitasi di bawah cahaya tampak (Chen *dkk.*, 2021).  $\text{NH}_2\text{-}$

MIL-101(Fe) memiliki bentuk mikrosipindil heksagonal yang menunjukkan koefisien penyerapan yang tinggi dalam spektrum cahaya tampak sebagai hasil dari adanya gugus okso. Menurut beberapa penelitian, gugus  $\text{Fe}_3\text{-}\mu_3\text{-okso}$  pada kerangkanya dapat meningkatkan mobilitas pembawa dalam cahaya tampak dan mencegah rekombinasi pasangan lubang-elektron selama proses fotokatalitik (Manna *dkk.*, 2024). Kombinasi g- $\text{C}_3\text{N}_4$  dengan  $\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  berpotensi menghasilkan efek sinergis, namun efektivitasnya sangat bergantung pada kualitas interaksi antarmuka dan mekanisme transfer muatan yang terbentuk dalam sistem komposit.

Meskipun kombinasi antara g- $\text{C}_3\text{N}_4$  dan  $\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  memiliki potensi sinergis, sebagian besar penelitian terdahulu mengenai komposit biner ini masih mengandalkan mekanisme transfer elektron *heterojunction* tipe-II. Secara teoritis, mekanisme tipe-II ini memiliki kelemahan karena dapat menurunkan potensial reduksi dan oksidasi pada situs aktif katalisator (Zheng *dkk.*, 2025). Di sisi lain, modifikasi cacat struktural melalui doping heteroatom oksigen pada g- $\text{C}_3\text{N}_4$  (O-g- $\text{C}_3\text{N}_4$ ) tidak hanya terbukti mempersempit energi celah pita, tetapi juga berpotensi menciptakan interaksi antarmuka yang lebih kuat dengan kluster logam pada MOFs. Masih terdapat celah penelitian yang signifikan terkait bagaimana integrasi antara doping oksigen pada g- $\text{C}_3\text{N}_4$  dengan  $\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  dapat memfasilitasi jalur transfer muatan yang lebih efisien, seperti mekanisme *Z-scheme* atau *S-scheme*. Ketersediaan data mengenai pengaruh variasi rasio massa O-g- $\text{C}_3\text{N}_4$  terhadap  $\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  dalam degradasi polutan organik kompleks seperti *crystal violet* masih sangat terbatas.

Berdasarkan hal tersebut, penelitian ini mengusulkan pengembangan komposit O-g- $\text{C}_3\text{N}_4/\text{NH}_2\text{-MIL-101(Fe)}$  melalui pendekatan optimasi komposisi dan evaluasi aktivitas fotokatalitik dalam degradasi *crystal violet* di bawah penyinaran cahaya tampak. Kebaruan penelitian ini terletak pada integrasi doping oksigen untuk merekayasa struktur elektronik g- $\text{C}_3\text{N}_4$  dengan pembentukan komposit berbasis MOFs yang dioptimalkan melalui variasi rasio massa O-g- $\text{C}_3\text{N}_4$  terhadap kinerja fotokatalitik. Penelitian ini diharapkan dapat memberikan kontribusi ilmiah

dalam pengembangan material fotokatalis berbasis kombinasi material 2D dan MOFs untuk aplikasi pengolahan air limbah yang lebih efektif dan berkelanjutan.

## **I.2 Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini, yaitu:

1. Menyintesis O-g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NH<sub>2</sub>-MIL-101(Fe) melalui metode solvotermal,
2. Menentukan komposisi optimum fotokatalis komposit melalui variasi rasio massa O-g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> terhadap prekursor NH<sub>2</sub>-MIL-101(Fe), dan
3. Mengevaluasi kinerja fotokatalitik O-g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/NH<sub>2</sub>-MIL-101(Fe) dalam degradasi pewarna *crystal violet*.