

# **BAB 1**

## **PENDAHULUAN**

### **1.1.Latar Belakang**

Pengembangan material pelapis (*coating film*) berbasis biopolimer terus menjadi perhatian karena meningkatnya kebutuhan akan material yang aman, *biodegradable*, dan memiliki aktivitas antibakteri yang kuat. Peningkatan kasus kontaminasi mikroba pada pangan, alat medis, dan material industri mendorong peneliti untuk mencari alternatif pengganti plastik sintetis yang umumnya tidak ramah lingkungan (Aizamddin *et al.*, 2022). Plastik berbasis minyak bumi yang umumnya digunakan untuk industri makanan memiliki sifat *resisten* terhadap degradasi alam, sehingga berkontribusi signifikan mencemari tanah dan laut, serta mengancam makhluk hidup lainnya. Kitosan menjadi salah satu bahan paling populer karena sifat antimikrobanya yang kuat serta kemampuannya membentuk film yang jernih dan stabil (Das *et al.*, 2017).

Kitosan merupakan derivat dari kitin, polisakarida yang banyak ditemukan pada kulit udang, kepiting, dan serangga. Melalui proses *deacetylation*, kitin diubah menjadi kitosan yang kaya akan gugus amina bebas. Gugus amina inilah yang memberi kitosan kemampuan antibakteri melalui interaksi elektrostatik antara muatan positif kitosan dengan muatan negatif pada dinding sel bakteri (Qu *et al.*, 2025). Efek ini menyebabkan kebocoran isi sel, gangguan transport nutrisi, hingga kematian bakteri. Keunggulan tersebut belum sepenuhnya mampu mengatasi kelemahan kitosan, karena film kitosan murni cenderung kaku, rapuh, dan kurang

fleksibel. Hal ini membatasi penggunaannya dalam aplikasi *coating* yang idealnya harus elastis, homogen, dan tahan terhadap kelembaban (Chia *et al.*, 2023).

Gelatin sering digunakan sebagai bahan pendamping kitosan. Gelatin adalah protein hasil hidrolisis kolagen yang memiliki struktur molekul fleksibel dan kaya gugus fungsional seperti amina, karboksil, dan hidroksil. Kombinasi antara polisakarida kitosan dan protein gelatin memungkinkan terbentuknya *polymer blend* yang stabil melalui ikatan hidrogen dan interaksi polielektrolit (Das *et al.*, 2017) Film kitosan gelatin menunjukkan peningkatan signifikan dalam *tensile strength*, *elongation at break*, serta kelarutan air yang lebih terkontrol. Sinergi antara kitosan dan gelatin telah diaplikasikan luas dalam dunia pangan, *wound dressing*, dan *biodegradable packaging* (Shao *et al.*, 2022).

Kombinasi kitosan dan gelatin masih memiliki keterbatasan dalam menghadapi bakteri patogen tertentu, terutama bakteri dengan struktur sel kompleks seperti *Staphylococcus aureus* dan *Escherichia coli*. Penambahan material dengan aktivitas antibakteri tambahan diperlukan untuk meningkatkan efektivitas film komposit tersebut. Salah satu material yang banyak dikaji adalah *graphitic carbon nitride* (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), yaitu fotokatalis bebas logam dengan struktur berlapis menyerupai grafit dan tersusun dari jaringan heptazin (Yang *et al.*, 2024).

*Graphitic carbon nitride* (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) memiliki kemampuan menghasilkan *Reactive Oxygen Species* (ROS) seperti •OH, •O<sub>2</sub><sup>-</sup>, dan *singlet oxygen* ketika tereksitasi oleh cahaya tampak. ROS inilah yang dapat merusak membran sel bakteri, mendenaturasi protein, dan menghambat replikasi DNA (Thurston *et al.*, 2017). Ketika g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dicampurkan ke dalam matriks polimer seperti kitosan atau

gelatin, ia mampu meningkatkan aktivitas antibakteri film terutama di bawah paparan cahaya. Beberapa studi menunjukkan bahwa film dengan tambahan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> mampu menghambat pertumbuhan *E. coli* hingga lebih dari 90% dalam kondisi terang. Selain itu, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> juga meningkatkan stabilitas termal dan kekuatan mekanik film (Ismael, 2020).

Penelitian yang dilakukan oleh (Liu *et al.*, 2023) melaporkan bahwa film fotokatalitik berbasis *graphitic carbon nitride* (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)/kitosan/polivinil alkohol memiliki aktivitas antibakteri yang baik untuk aplikasi pengemasan buah dengan nilai kuat tarik sebesar 41,2 MPa dan persen elongasi sebesar 24,7%. Namun, berdasarkan standar sifat mekanik plastik kemasan menurut SNI, nilai kuat tarik material kemasan yang baik umumnya berada pada rentang 24,7–302 MPa (Gabriel *et al.*, 2021), sehingga film tersebut masih belum menunjukkan performa mekanik yang optimal untuk aplikasi kemasan yang lebih luas. Selain itu, film yang dihasilkan masih bersifat hidrofilik dengan nilai *water contact angle* sekitar 38° serta belum banyak dikaji terkait biodegradabilitasnya. Kondisi tersebut menunjukkan bahwa pengembangan lebih lanjut masih diperlukan untuk meningkatkan sifat mekanik, hidrofobisitas, dan stabilitas film.

Eugenol adalah senyawa fenolik aromatik yang menjadi komponen utama minyak cengkeh. Struktur eugenol terdiri atas cincin aromatik dengan gugus *hydroxyl* (–OH), gugus *allyl* (–CH<sub>2</sub>–CH=CH<sub>2</sub>), dan gugus *methoxy* (–OCH<sub>3</sub>). Kombinasi gugus-gugus ini membuat eugenol memiliki aktivitas antibakteri yang kuat. Mekanisme antibakterinya bekerja melalui interaksi gugus hidroksil fenolik dengan membran sel bakteri sehingga merusak permeabilitas sel, menyebabkan

kebocoran ion dan metabolit penting, serta menghambat enzim vital bakteri (Prasetya *et al.*, 2021).

Walaupun eugenol memiliki aktivitas biologis yang tinggi, senyawa ini tetap memiliki sejumlah keterbatasan mendasar. Sifat *volatile* menyebabkan eugenol mudah menguap sehingga efektivitasnya menurun seiring waktu. Karakter *hydrophobic* yang dimilikinya juga menghambat distribusi yang merata dalam matriks polimer hidrofilik seperti kitosan–gelatin. Selain itu, eugenol murni cenderung mudah teroksidasi dan kurang stabil terhadap paparan panas maupun cahaya. Ukuran molekulnya yang relatif kecil menyebabkan eugenol mudah berdifusi keluar dari film (*rapid diffusion*), sehingga aktivitas antibakterinya tidak dapat bertahan lama. Keterbatasan lain terletak pada ketidakmampuannya membentuk jaringan polimer, sehingga kontribusinya dalam meningkatkan sifat mekanik film menjadi sangat terbatas. (Djunaidi *et al.*, 2020).

Kebutuhan akan peningkatan stabilitas dan performa eugenol dalam sistem film mendorong penggunaan agen pengikat silang (*crosslinking agent*) untuk membentuk jaringan polimer yang lebih kuat dan terorganisasi. Dalam hal ini, *ethylene glycol dimethacrylate* (EGDMA) berperan penting sebagai monomer *dimethacrylate* yang memiliki dua gugus metakrilat reaktif pada kedua ujung molekulnya. Gugus metakrilat tersebut mampu mengalami *free radical polymerization* sehingga memungkinkan terbentuknya struktur jaringan polimer tersilang (*crosslinked polymer network*). Peran EGDMA tidak terbatas sebagai *crosslinker*, tetapi juga sebagai penghubung yang mengintegrasikan molekul-

molekul eugenol yang sebelumnya tidak dapat saling berikatan.(Djunaidi *et al.*, 2021).

Eugenol yang dimodifikasi menjadi *eugenyl methacrylate*, memungkinkan eugenol untuk melakukan reaksi polimerisasi dengan sangat mudah dan stabil. Pada tahap ini, EGDMA berfungsi sebagai unit penghubung dua atau lebih monomer eugenol, membentuk jaringan polimer tridimensional yang disebut *Copolyeugenol-ethylene glycol dimethacrylate (Co-EEGDMA)* (Kiswandono *et al.*, 2017). Melalui mekanisme tersebut, berbagai keterbatasan eugenol dapat diatasi secara signifikan. Volatilitasnya menurun karena molekul eugenol telah terikat dalam jaringan polimer, sehingga tidak mudah menguap. Stabilitas termal dan kimianya juga meningkat, sementara laju pelepasannya menjadi lebih lambat dan terkontrol (*controlled release*), sehingga aktivitasnya dapat bertahan lebih lama.

Tidak hanya dapat meningkatkan stabilitas eugenol, EGDMA juga memberikan manfaat mekanik yang cukup penting. Polimer jaringan hasil *crosslinking* ini membuat struktur film menjadi lebih kokoh, tidak mudah sobek, serta memiliki ketahanan air dan ketahanan panas yang lebih tinggi. Hal ini sangat penting saat Co-EEGDMA dimasukkan ke dalam matriks kitosan–gelatin, karena film komposit yang terbentuk akan memiliki kekuatan tarik yang lebih baik serta struktur internal yang lebih rapat. Dengan struktur yang lebih terorganisasi, penyebaran  $g-C_3N_4$  sebagai *nano-filler* juga menjadi lebih stabil dan tidak mudah mengendap atau menggumpal.

Salah satu pendekatan yang dapat dilakukan adalah penambahan kopolimer eugenol yang memiliki aktivitas antibakteri alami. Penelitian oleh(Prasetya *et al.*,

2021) menunjukkan bahwa kopolimer eugenol tersilang divinilbenzena (DVB) menghasilkan zona hambat antibakteri sebesar 0,63–1,87 mm yang termasuk kategori lemah. Berdasarkan standar interpretasi CLSI (*Clinical and Laboratory Standards Institute*), aktivitas antibakteri dikategorikan menjadi lemah (<5 mm), sedang (5–10 mm), kuat (10–20 mm), dan sangat kuat (>20 mm) (Fathurrahman *et al.*, 2022). Oleh karena itu, modifikasi menggunakan kopolimer eugenol etilen glikol dimetakrilat (Co-EEGDMA) pada sistem *coating film* kitosan–gelatin/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> diharapkan mampu meningkatkan aktivitas antibakteri, memperbaiki sifat mekanik, serta menghasilkan film yang lebih stabil dan biodegradable untuk aplikasi kemasan pangan aktif.

Penambahan Co-EEGDMA ke dalam film kitosan–gelatin–g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> menyebabkan terjadinya interaksi antara gugus hidroksil dan amino pada kitosan–gelatin dengan gugus karbonil dan ester dari jaringan Co-EEGDMA melalui ikatan hidrogen. Lapisan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dapat berperan sebagai *filler* yang berinteraksi melalui gaya van der Waals dengan jaringan aromatik eugenol. Jaringan crosslink EGDMA membatasi mobilitas molekul, sehingga pelepasan eugenol ke lingkungan menjadi lambat dan terkendali, sehingga aktivitas antibakteri bertahan lebih lama.

## 1.2 Tujuan Penelitian

Penelitian ini dirumuskan untuk :

1. Sintesis kopolimer eugenol-etilen glikol dimetakrilat (Co-EEGDMA)
2. Melakukan sintesis *graphitic carbon nitride* (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) dengan metode kondensasi termal

3. Sintesis *coating film* berbasis kitosan, gelatin, dan *graphitic carbon nitride* ( $g-C_3N_4$ ) dengan variasi konsentrasi Co-EEGDMA (0%, 1,25%, 2,5%, dan 3,75% )
4. Pengaruh konsentrasi Co-EEGDMA terhadap sifat fisik yang mencakup nilai kuat tarik (TS), persen perpanjangan (E%), sudut kontak, morfologi, aktivitas antibakteri, sifat biodegradable film komposit