

BAB I

PENDAHULUAN

I.1 Latar Belakang

Peningkatan aktivitas industri tekstil dalam beberapa dekade terakhir telah menyebabkan peningkatan signifikan jumlah limbah cair yang dilepaskan ke lingkungan perairan (Wu *dkk.*, 2025). Limbah tekstil umumnya mengandung campuran kompleks berupa zat warna sintetik, garam anorganik, surfaktan, serta berbagai senyawa organik yang sulit terdegradasi secara alami (Christian *dkk.*, 2023, Guo *dkk.*, 2023). Di antara berbagai jenis zat warna yang digunakan dalam industri tekstil, pewarna azo menyumbang hampir setengah dari total produksi zat warna dunia dan menjadi salah satu kontaminan yang paling banyak ditemukan pada air limbah tekstil (Zafar *dkk.*, 2022). Salah satu zat warna azo yang banyak digunakan adalah Remazol Black B (RBB), yang memiliki struktur aromatik kompleks dan ikatan azo ($-N=N-$) sehingga menunjukkan stabilitas kimia tinggi dan resistensi terhadap proses degradasi alami.

Keberadaan zat warna dalam badan air dapat menghambat penetrasi cahaya matahari, menurunkan konsentrasi oksigen terlarut, meningkatkan kebutuhan oksigen biologis dan kimia, serta menimbulkan efek toksik terhadap berbagai organisme akuatik (Al-Tohamy *dkk.*, 2022). Selain itu, kandungan garam anorganik yang tinggi dalam limbah tekstil juga dapat meningkatkan salinitas lingkungan perairan dan mengganggu efektivitas proses pengolahan biologis konvensional akibat terhambatnya aktivitas mikroorganisme (Guo *dkk.*, 2023). Oleh karena itu, pengembangan teknologi yang mampu menghilangkan zat warna sekaligus menangani kompleksitas komposisi limbah tekstil menjadi tantangan penting dalam bidang remediasi lingkungan.

Berbagai metode konvensional yang umum digunakan dalam pengolahan air limbah tekstil, seperti adsorpsi, koagulasi-flokulasi, dan pengolahan biologis, masih memiliki sejumlah keterbatasan, antara lain biaya yang relatif tinggi, efisiensi pemurnian yang rendah, serta potensi menghasilkan limbah sekunder (Al-Tohamy *dkk.*, 2022, Kusumlata *dkk.*, 2024). Selain itu, pendekatan konvensional tidak mampu memisahkan secara efektif molekul zat warna berukuran besar dari

ion garam berukuran kecil, sehingga pemanfaatan kembali air dan garam belum dapat dilakukan secara optimal (Cai *dkk.*, 2024). Oleh sebab itu, penelitian mengenai material fungsional yang dapat meningkatkan efisiensi teknologi remediasi air terus menjadi fokus utama dalam beberapa tahun terakhir.

Karbon nitride grafitik (g-C₃N₄) merupakan semikonduktor bebas logam berbasis karbon dengan struktur berlapis tri-s-triazin dan energi celah pita sekitar 2,7 eV yang banyak dikembangkan untuk aplikasi lingkungan karena memiliki stabilitas kimia dan termal yang baik, biaya sintesis rendah, tidak beracun, serta aktif di bawah cahaya tampak (Sahoo *dkk.*, 2024). Material ini telah dimanfaatkan dalam berbagai bidang, termasuk fotokatalisis, adsorpsi, dan teknologi membran (Wang *dkk.*, 2017b). Namun, g-C₃N₄ murni masih memiliki keterbatasan berupa luas permukaan spesifik yang rendah, mobilitas pembawa muatan yang terbatas, dan tingginya laju rekombinasi elektron–hole, yang dapat menurunkan kinerja material (Ismael dan Wu, 2019). Oleh karena itu, berbagai strategi modifikasi, seperti doping unsur non-logam, rekayasa cacat, modifikasi permukaan, dan pembentukan *heterojunction*, telah dikembangkan untuk meningkatkan sifat fisikokimia dan fungsionalitas g-C₃N₄ (Voon *dkk.*, 2022, Zhang *dkk.*, 2025a).

Doping unsur non-logam merupakan salah satu strategi yang paling banyak diterapkan untuk meningkatkan kinerja g-C₃N₄. Doping oksigen dan sulfur dilaporkan mampu memodifikasi struktur elektronik material melalui peningkatan pemisahan muatan fotogenerasi, penambahan situs aktif, perluasan respons terhadap cahaya tampak, serta introduksi gugus fungsi baru pada permukaan material (Pérez-Torres *dkk.*, 2023, Wei *dkk.*, 2023, Zhang *dkk.*, 2021b). Selain itu, pembentukan *heterojunction* dengan *reduced graphene oxide* (rGO) dapat mempercepat transfer elektron antarmuka dan menekan rekombinasi elektron-hole, sehingga meningkatkan aktivitas fotokatalitik secara signifikan (Mondal *dkk.*, 2021). Berbagai pendekatan modifikasi tersebut menunjukkan bahwa sifat fisikokimia g-C₃N₄ dapat direkayasa untuk mendukung berbagai aplikasi remediasi lingkungan, baik sebagai fotokatalis maupun sebagai material fungsional dalam sistem membran.

Salah satu aplikasi yang berpotensi memperoleh manfaat dari modifikasi g-C₃N₄ adalah teknologi membran, khususnya *loose nanofiltration* (LNF). Teknologi ini berkembang sebagai metode yang menjanjikan untuk pengolahan limbah tekstil karena mampu memisahkan zat warna dan ion garam secara selektif pada tekanan operasi rendah (1-4 bar), dengan konsumsi energi yang relatif kecil dan efisiensi pemisahan yang tinggi (Maraddi *dkk.*, 2025). Namun, kinerja membran LNF masih sering dibatasi oleh fenomena *fouling* akibat akumulasi kontaminan pada permukaan maupun pori membran, yang dapat menyebabkan penurunan fluks, berkurangnya efisiensi pemisahan, dan meningkatnya frekuensi pembersihan membran (Cai *dkk.*, 2021, Luo dan Wan, 2013). Oleh karena itu, perlu untuk mengembangkan material membran dengan menjaga keseimbangan antara selektivitas warna-garam, stabilitas struktural, dan resistansi terhadap *fouling*.

Dalam konteks tersebut, g-C₃N₄ termodifikasi menjadi material yang menarik untuk digunakan sebagai *interlayer* pada membran komposit (Mulungulungu *dkk.*, 2022). Doping oksigen yang diikuti protonasi dapat meningkatkan jumlah gugus fungsi hidrofilik pada permukaan g-C₃N₄ sehingga memperkuat interaksi dengan matriks polimer dan meningkatkan stabilitas antarmuka (Yang dan Bian, 2021). Selain itu, aktivitas fotokatalitik yang dimiliki g-C₃N₄ membuka peluang untuk menghasilkan sifat *self-cleaning* melalui degradasi fotokatalitik kontaminan yang terakumulasi pada permukaan membran (Wang *dkk.*, 2020). Dengan demikian, modifikasi g-C₃N₄ melalui doping oksigen dan protonasi berpotensi memberikan manfaat ganda, yaitu meningkatkan performa pemisahan membran sekaligus mendukung mekanisme mitigasi *fouling* berbasis fotokatalitik.

Meskipun berbagai penelitian telah menunjukkan bahwa modifikasi g-C₃N₄ melalui doping unsur non-logam, pembentukan *heterojunction*, maupun fungsionalisasi permukaan mampu meningkatkan sifat fisikokimia material, sebagian besar studi masih berfokus pada peningkatan kinerja fotokatalitik atau performa membran secara terpisah (Hammoud *dkk.*, 2024, Lin *dkk.*, 2023, Sinha *dkk.*, 2025). Pada pengembangan membran fotokatalitik, pemanfaatan g-C₃N₄ termodifikasi sebagai *interlayer* untuk menghasilkan kombinasi kemampuan pemisahan dan sifat *self-cleaning* masih relatif terbatas. Selain itu, hubungan antara

modifikasi struktur dan permukaan g-C₃N₄ dengan aktivitas fotokatalitik yang mendasari mekanisme *self-cleaning* membran belum sepenuhnya dipahami. Oleh karena itu, diperlukan kajian yang tidak hanya mengevaluasi peran g-C₃N₄ termodifikasi dalam meningkatkan kinerja pemisahan membran, tetapi juga mengkaji karakteristik fotokatalitiknya sebagai dasar ilmiah bagi pengembangan membran *self-cleaning* yang lebih efektif.

Berdasarkan latar belakang tersebut, penelitian ini bertujuan mengembangkan membran LNF berbasis PVA/PAA dengan *interlayer* g-C₃N₄ termodifikasi melalui doping oksigen dan protonasi untuk meningkatkan pemisahan zat warna dan ion garam serta meningkatkan ketahanan terhadap *fouling* melalui mekanisme *self-cleaning*. Selain itu, penelitian ini juga mengkaji sifat fotokatalitik g-C₃N₄ termodifikasi melalui studi komparatif menggunakan sistem S-doped g-C₃N₄/rGO guna memperoleh pemahaman yang lebih mendalam mengenai pengaruh rekayasa struktur dan permukaan terhadap aktivitas fotokatalitik material.

Secara ilmiah, penelitian ini diharapkan dapat memberikan pemahaman yang lebih komprehensif mengenai hubungan antara modifikasi struktur dan permukaan g-C₃N₄ dengan sifat fungsional yang dihasilkan, baik dalam mendukung proses degradasi fotokatalitik maupun dalam meningkatkan performa membran. Hasil penelitian ini diharapkan dapat memperluas pemanfaatan g-C₃N₄ termodifikasi sebagai material fungsional pada teknologi pengolahan limbah zat warna, khususnya dalam pengembangan membran *self-cleaning* yang mengombinasikan kemampuan pemisahan dan aktivitas fotokatalitik secara lebih efektif dan berkelanjutan.

I.2 Rumusan Masalah

Rumusan masalah dalam penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Bagaimana karakteristik g-C₃N₄ yang dimodifikasi melalui doping oksigen dan protonasi serta potensinya sebagai material *interlayer* pada membran LNF?
2. Bagaimana pengaruh penggunaan *interlayer* AO-g-C₃N₄ terhadap karakteristik dan kinerja membran LNF berbasis PVA/PAA dalam pemisahan zat warna Remazol Black B dan ion garam?

3. Bagaimana ketahanan terhadap *fouling* dan kemampuan *self-cleaning* membran LNF berbasis AO-g-C₃N₄/PVA-PAA yang dikembangkan?
4. Bagaimana pengaruh berbagai strategi modifikasi g-C₃N₄, khususnya doping sulfur dan pembentukan *heterojunction* dengan rGO, terhadap sifat fotokatalitik material?
5. Bagaimana keterkaitan antara modifikasi struktur dan permukaan g-C₃N₄, sifat fotokatalitik material, dan kemampuan *self-cleaning* membran yang dikembangkan?

I.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Mensintesis dan mengkarakterisasi g-C₃N₄ termodifikasi melalui doping oksigen dan protonasi.
2. Mengembangkan membran LNF berbasis PVA/PAA dengan *interlayer* AO-g-C₃N₄.
3. Mengevaluasi kinerja membran terhadap pemisahan Remazol Black B dan ion garam.
4. Mengevaluasi ketahanan *fouling* dan kemampuan *self-cleaning* membran.
5. Mengkaji hubungan antara modifikasi struktur dan permukaan g-C₃N₄, sifat fotokatalitik material, dan kemampuan *self-cleaning* membran melalui integrasi hasil penelitian AO-g-C₃N₄ dan S-doped g-C₃N₄/rGO.

I.4 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan dapat memberikan kontribusi ilmiah dan teknologi dalam pengembangan material berbasis g-C₃N₄ untuk remediasi lingkungan. Secara ilmiah, penelitian ini dapat memperluas pemahaman mengenai pengaruh modifikasi struktur dan permukaan g-C₃N₄ melalui doping oksigen, protonasi, doping sulfur, dan pembentukan *heterojunction* dengan rGO terhadap sifat fisikokimia, aktivitas fotokatalitik, serta peranannya dalam mendukung kemampuan *self-cleaning* pada membran. Secara teknologi, penelitian ini diharapkan menjadi dasar pengembangan membran LNF berbasis PVA/PAA dengan *interlayer* AO-g-C₃N₄ yang memiliki kinerja pemisahan zat warna dan ion garam yang baik, ketahanan *fouling* yang lebih tinggi, serta kemampuan

pembersihan diri yang lebih efektif. Selain itu, hasil penelitian ini berpotensi mendukung pengembangan teknologi pengolahan limbah tekstil yang lebih efisien, hemat energi, dan ramah lingkungan, sekaligus mendorong pemanfaatan kembali air proses (*water reuse*) dan pengurangan beban pencemaran lingkungan akibat limbah zat warna