

ORIENTASI SIFAT MEKANIK DAN RASIO PENGEMBANGAN HIDROGEL METILSELULOSA

Amyah Suliwarno

Pusat Aplikasi Teknologi Isotop dan Radiasi (PATIR)-BATAN

Jl. Lebak Bulus Raya No 49 Jakarta 12440

email: amyahs@batan.go.id

Diterima: 7 Mei 2013

Diperbaiki: 29 Agustus 2013

Disetujui: 19 September 2013

ABSTRAK

ORIENTASI SIFAT MEKANIK DAN RASIO PENGEMBANGAN HIDROGEL METILSELULOSA. Telah diperoleh hidrogel dari iradiasi metilselulosa pada empat konsentrasi yaitu 10 %, 15 %, 20 % dan 30 % berat. Metilselulosa yang digunakan adalah *metolose* SM-100. Proses radiasi dilakukan dengan mesin berkas elektron tipe *Cock-Croft Walton* pada energi 1 MeV, 10 mA, dengan variasi dosis 10 kGy sampai 100 kGy, pada laju dosis 10kGy/lintas. Film hidrogel kemudian dikarakterisasi meliputi; rasio pengembangan, fraksi gel, kekuatan tarik dan persen perpanjangan putus. Pengamatan menunjukkan bahwa rasio pengembangan optimum untuk semua konsentrasi terjadi pada dosis 20 kGy dan menurun dengan naiknya dosis radiasi. Persen fraksi gel optimum ditemukan pada dosis 20 kGy, untuk semua konsentrasi dan naik seiring naiknya dosis radiasi, kecuali konsentrasi gel 10 %. Kekuatan tarik secara nyata terlihat mulai konsentrasi 20 % untuk dosis 20 kGy, dengan hasil tertinggi yaitu 0,50 MPa dari dosis 40 kGy. Pada konsentrasi 30 % kekuatan tarik terlihat turun relatif kecil yaitu 0,15 MPa pada dosis 40 kGy. Perpanjangan putus tidak ditemukan pada dosis 10 kGy, karena rasio pengembangan dan fraksi gelnya relatif rendah. Perpanjangan putus optimum terjadi pada konsentrasi 20 % dari dosis 20 kGy yaitu 200 %, dengan kecenderungan turun untuk kenaikan dosis radiasi, karena terjadi proses degradasi. Hidrogel metilselulosa SM-100 terikat silang secara optimum pada konsentrasi 20 % dengan dosis 20 kGy hingga 40 kGy. Pada kenaikan dosis berikutnya, gel akan terdegradasi dan untuk konsentrasi 30 % diperoleh gel yang keras dan rapuh.

Kata kunci : Metilselulosa, Iradiasi berkas elektron, Ikatan silang, Degradasi

ABSTRACT

ORIENTATION OF MECHANICAL PROPERTIES AND SWELLING BEHAVIOUR OF METHYLCELLULOSE HYDROGELS. Methylcellulose hydrogels has been synthesized by irradiation method from four concentrations of 10 %, 15 %, 20 % and 30 % (w/w). *Metolose* SM-100 was uses as methylselulosa sample. Radiation processing has been carried out by using electron beam machine of *Cock - Croft Walton* type on the energy of 1 MeV, 10 mA, at a dose rate of 10 kGy per pass, with dose range of 10 to 100 kGy. Hydrogels films then were characterized which including theirs swelling ratio, gel fraction, tensile strength and percent of elongation. Observations showed that the optimum swelling ratio for all concentrations were occurred at dose of 20 kGy, then decreased with increasing of radiation dose. The optimum gel fraction was also found at 20 kGy. Percent gel's fraction was increasing as rising of radiation dose, except for the concentration of 10%. Tensile strength is evident start at the concentration of 20 % with a dose of 20 kGy. The highest tensile strength was achieved at 20 % concentration and dose of 40 kGy which gave the value of 0.50 MPa. For the concentration of 30 %, tensile strength began to be found at the dose of 40 kGy, but only at relatively small value (0.15 MPa). By the dose of 40 kGy and concentration of 30 %, the tensile strength decreased to 0.15 MPa. The elongation at break is not found on the 10 % of concentration and 10 kGy dose, because their swelling ratio and gel fraction are relatively low. The optimum elongation was achieved at the concentration of 20 % with a dose of 20 kGy, which is 200 %. Optimum crosslink of methylcellulose SM-100 hydrogels was achieved at a concentration of 20 % and dose range of 20-40 kGy. Increasing irradiation doses will degrade the gels and at the concentration of 30 % hard and brittle gels were obtained.

Keywords : Methylcellulose, Electron beam irradiation, Crosslinking, Degradation

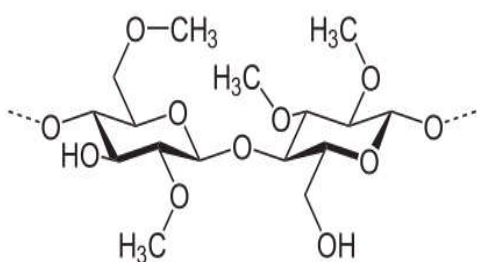
PENDAHULUAN

Hidrogel didefinisikan sebagai polimer yang memiliki kemampuan mengembang (*swelling*) dalam air atau cairan biologi dengan tetap dapat mempertahankan bentuk, dan tidak larut dalam air meskipun bersifat hidrofilik. Hidrofilisitasnya karena gugus hidrofilik seperti; $-OH$, $-COOH$, $-COONH_2$, dan $-SO_3H$. Di dalam air, hidrogel dapat menyerap air hingga mencapai volume yang berkeimbangan dengan bentuk yang tidak berubah, bersifat fleksibel dan elastis. Kestabilan dan ketidaklarutan dalam air merupakan akibat dari terbentuknya struktur jaringan tiga dimensi (*crosslinking*) dalam hidrogel [3].

Dalam perkembangannya, hidrogel selain dibuat dari bahan sintetik seperti polivinil alkohol (PVA) dan polivinil pirolidon (PVP) dapat juga dibuat dari polimer alam misalnya polisakarida dan turunannya. Pada umumnya hidrogel dari bahan alam bersifat non toksis, biokompatibel, ramah lingkungan dan murah harganya. Polisakarida yang diteliti serta dikembangkan pada pembuatan hidrogel antara lain karboksimetilselulosa (CMC), yang mampu mengikat air dalam jumlah besar yang merupakan salah satu sifat hidrogel yang penting [2].

Metilselulosa adalah *derivative* selulosa, polimer karbohidrat yang larut dalam air dengan kecenderungan membentuk ikatan silang tiga dimensi, yang mengembang (*swelling*) dalam air atau cairan biologis, membentuk suatu larutan bening yang viskos atau membentuk gel. Dalam perdagangan, metilselulosa diproduksi dengan berbagai macam nama dagang, seperti *metolose* (Shin Etsu Co.), *methocel A*. (Sigma-Aldrich), dan di industri digunakan sebagai pengental dan *emulsifier*. Aplikasi lain dari metilselulosa yaitu dalam berbagai produk makanan dan kosmetik, serta sebagai pengobatan sembelit. Seperti halnya selulosa, metilselulosa tidak dapat dicerna, tidak beracun, serta tidak menyebabkan alergi. Secara kimia metilselulosa mempunyai struktur seperti Gambar 1.

Berbagai macam penggunaan metilselulosa di industri, di antaranya sebagai bahan pengental atau pengaturan kekentalan (bergantung pada berat molekul) yaitu pada sistem pengecatan, pengemulsi dan penstabil khususnya pada produk kesehatan dan produk makanan [1].



Gambar 1. Struktur metilselulosa

Dalam beberapa tahun terakhir, metilselulosa secara umum digunakan sebagai produk yang ramah lingkungan, yaitu untuk pelapis film atau film mulsa, karena ketersediaannya yang banyak serta murah, dan prosesnya mudah. Selain itu, metilselulosa memiliki potensi yang besar dalam aplikasinya sebagai adesif pada bidang-bidang perkayuan, buku/kertas dan dekorasi. Namun demikian metilselulosa mempunyai kelarutan yang tinggi sehingga dapat membatasi pemakaiannya.

Untuk memperluas aplikasinya sebagai hidrogel, metilselulosa perlu dimodifikasi dengan pembentukan ikatan silang (*crosslinking*) dengan teknik radiasi pengion. Dengan metode ini, dapat dihasilkan beberapa karakter polimer yang diharapkan, diantaranya; rasio pengembangan (*swelling behaviour*), sifat mekanik, stabilitas kimia, dan tingkat biodegradasinya [4].

Pada teknik radiasi pengion, hidrogel dibuat dari proses polimerisasi, yakni pembentukan radikal bebas yang diikuti dengan reaksi pembentukan ikatan silang dari monomer atau polimer dalam larutan air dengan bantuan radiasi sinar- γ atau berkas elektron. Teknik iradiasi ini dipandang sebagai metode yang efektif untuk mendapatkan struktur makroskopik tiga dimensi, serta tidak diperlukan adanya inisiator reagen kimia, sehingga produknya murni dan prosesnya menjadi lebih sederhana [5].

Penelitian ini bertujuan untuk mengkaji sifat mekanik dan pengembangan hidrogel yang dibuat dari metilselulosa dengan teknik iradiasi.

METODE PERCOBAAN

Bahan

Serbuk metilselulosa, *metolose* SM-100 (Shin Etsu Co., Japan) sebagai bahan utama pembuatan gel, air suling demineralisasi serta lembaran film poli propilen (PP) untuk pengemas larutan pasta.

Peralatan

Beberapa peralatan serta bahan pendukung lain yang digunakan meliputi mesin berkas elektron Cock-Croft Walton NHV 5 MeV, 30 mA (JAEA Takasaki, Japan), sentrifus dengan wadah tertutup (*cup and cover*), pengemas vakum (*vacuum sealer*), neraca analitik, saringan kawat baja 200 *mesh*, kertas saring dan sebagainya.

Preparasi Hidrogel

Dibuat tiga macam larutan pasta dari konsentrasi masing-masing 10 %, 20 % dan 30 % berat dengan cara menambahkan sejumlah serbuk metilselulosa ke dalam air suling pada wadah plastik kapasitas 200 mL, diaduk dan ditutup rapat kemudian dilakukan sentrifus pada

2500 rpm selama 10 menit. Larutan pasta 10 %, disiapkan dengan cara menambahkan 20 gr serbuk metilselulosa ke dalam wadah yang berisi 180 gr air, dan seterusnya untuk konsentrasi 20 % dan 30 %. Campuran/pasta disimpan dalam lemari pendingin 12 °C hingga 15 °C selama 24 jam untuk pematapan homogenitasnya. Film pasta metilselulosa ukuran 20 cm × 20 cm × 1,2 mm dibuat secara pengepresan larutan pasta dalam plastik PP sebagai lapisan pengemas pada tekanan 150 kg/cm², kemudian dilakukan segel vakum. Hidrogel metilselulosa diperoleh dari iradiasi film pasta dengan mesin berkas elektron *Cock-Croft Walton* energi 1 MeV, 10 mA dengan dosis radiasi masing-masing 10 kGy, 20 kGy, 30 kGy, 40 kGy, 50 kGy, 60 kGy, 80 kGy dan 100 kGy, pada laju dosis 10 kGy/lintas. Dengan mengatur arah serta kecepatan maju dan mundur *conveyor* dalam melintasi *window beam*, pengaturan dosis iradiasi, 10 kGy sampai dengan 100 kGy dapat dilakukan.

Penentuan Persen Derajat Pengembangan (*Degree of Swelling*)/DS

Persen atau derajat pengembangan didefinisikan sebagai perbandingan berat dari gel saat mengembang (*swelling*) dengan berat gel kering. Rasio pengembangan ini dapat ditentukan dengan cara memotong film gel dengan ukuran masing-masing 1cm × 1cm, dan dibuang plastik pengemasnya. Potongan pertama dikeringkan dalam *oven* 80°C selama 24 jam, lalu ditimbang sebagai bobot kering, W_d . Potongan kedua dilarutkan dalam air didiamkan semalam, gel lalu diambil dan permukaannya diusap dengan kertas tisu, dan ditimbang sebagai berat saat mengembang, W_s .

Rasio pengembangan atau *degree of swelling*, diformulasikan dengan Persamaan (1),

$$DS = \frac{W_s}{W_d} \times 100\% \quad \dots\dots\dots (1)$$

dimana :

- W_s = berat gel di saat mengembang, g.
- W_d = berat gel kering, g.

Pengujian Fraksi Gel (*Gel Fraction*)

Dua potong film hidrogel disiapkan dengan ukuran 1 cm × 1 cm, dan masing-masing dibuang plastik pengemasnya. Potongan pertama dimasukkan ke dalam *oven* suhu 80 °C selama 24 jam, kemudian gel kering ditimbang sebagai W_o . Potongan film kedua dibungkus dengan saringan kawat baja 200 *mesh* dan direndam dalam air pada suhu kamar sambil digoyang (*shaker*) selama 24 jam, kemudian dikeringkan dengan *oven* 80 °C untuk 24 jam, setelah itu ditimbang sebagai W_d . Fraksi gel adalah persen dari hidrogel yang tidak larut dalam air

(pelarut), maka fraksi gel dapat dirumuskan dengan formulasi dengan Persamaan (2);

$$\text{Fraksi gel} = \frac{W_d}{W_o} \times 100\% \quad \dots\dots\dots (2)$$

dimana :

- W_o = berat awal hidrogel kering, g
- W_d = berat hidrogel kering setelah pelarutan, g

Kekuatan Tarik (*Tensile Strength*)/TS

Untuk penentuan kekuatan tarik, film hidrogel dipotong dengan pisau *dumbbell cutter* seri ASTM D 412 dalam beberapa potong, kemudian dilakukan pengujian dengan Instron tester Stograph-R1 (Toyoseiki). Spesi film uji dari ASTM D 412 berbentuk spesifik, dengan lebar bagian putus = 0,3 cm, sedangkan bagian mulur adalah 1 cm. Jumlah beban (kg) dalam penentuan sifat fisik ini adalah puncak yang merepresentasikan berapa beban untuk dapat menarik spesi film hidrogel hingga putus, yang tertera sebagai jarak (CM) pada *chart paper* pada saat putus.

Kekuatan tarik, TS diformulasikan sebagai Persamaan (3);

$$TS = \frac{F}{L \times t} \quad \dots\dots\dots (3)$$

di mana:

- F = beban putus, kg
- L = Lebar spesi film uji, 0,3 cm,
- t = Ketebalan film hidrogel, cm.

Untuk perpanjangan putus, atau *elongation at break*, EB dapat dilihat pada Persamaan (4);

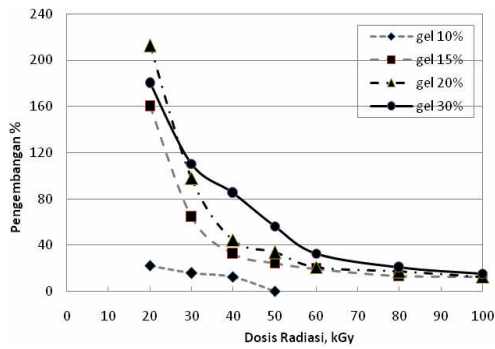
$$EB = \frac{L_b}{L_o} \times 100\% \quad \dots\dots\dots (4)$$

di mana:

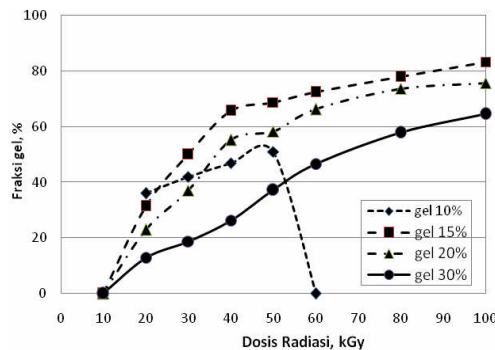
- L_b = Panjang spesi film uji yang mulur pada saat putus, cm
- L_o = Panjang spesi film uji awal, cm.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Aplikasi hidrogel meliputi berbagai macam bidang dengan aplikasi yang spesifik dari hidrogel harus didasarkan pada struktur dan sifat mekaniknya [6]. Penggunaan radiasi mesin berkas elektron dalam sintesis hidrogel metilselulosa, merupakan metode yang efisien dalam pembuatan hidrogel dari selulosa dan derivatifnya [7]. Rasio pengembangan (*swelling*) dari hidrogel metilselulosa SM-100 disajikan pada Gambar 2. Terlihat bahwa untuk semua konsentrasi, tidak ditemukan adanya rasio pengembangan pada dosis 10kGy, artinya pada

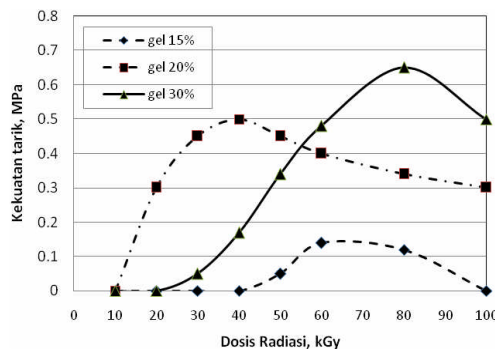


Gambar 2. Rasio pengembangan hidrogel SM-100 pada berbagai konsentrasi versus dosis radiasi.

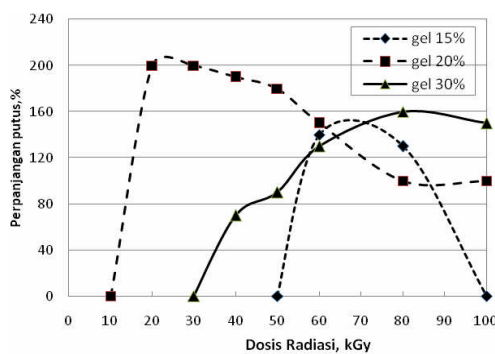


Gambar 3. Fraksi gel hidrogel SM-100 pada berbagai konsentrasi versus dosis radiasi.

kondisi ini semua gel larut dalam air, yang diduga kuat tidak terjadi proses *crosslinking*. Pada dosis 20 kGy, mulai terlihat rasio pengembangan yang bertendensi turun, dengan naiknya dosis radiasi. Pada dosis yang relatif tinggi, maka pusat-pusat aktif semakin banyak [3],



Gambar 4. Kekuatan tarik hidrogel SM-100 pada berbagai konsentrasi versus dosis radiasi.



Gambar 5. Perpanjangan putus hidrogel SM-100 pada berbagai konsentrasi versus dosis radiasi.

yang berakibat semakin besar pula konsentrasi gel yang terjadi (Gambar 3). Semakin besar fraksi gel, semakin kecil porositas matrik gel tersebut, sehingga semakin kecil pula kemampuan gel tersebut untuk mengikat air. Hal ini sejalan dengan hasil penelitian lain yang menunjukkan bahwa kemampuan hidrogel untuk mengembang bergantung pada dua faktor yaitu gugus hidrofilik dan sifat porositasnya [8]. Selain faktor porositas dan hidrofilisitasnya, terjadinya proses degradasi pada dosis tinggi (> 30 kGy) [7], diduga menjadi faktor turunnya rasio pengembangan.

Terkait dengan rasio pengembangan, fraksi gel adalah parameter terjadinya ikatan silang sehingga gel tidak larut dalam air (Gambar 3). Dari ke 4 kurva, yaitu konsentrasi 10 %, 15 %, 20 % dan 30 % terlihat masing mempunyai titik maksimum, di antaranya pada sampel 10 % hanya terjadi gel pada rentang variasi dosis 20 kGy hingga 50 kGy. Untuk dosis lebih tinggi gel melarut, yang diduga terjadi akibat adanya degradasi [3]. Untuk konsentrasi gel menengah ke atas, yaitu 15 %, 20% dan 30 %, fraksi gel naik dengan naiknya dosis iradiasi, namun turun pada konsentrasi gel yang lebih besar. Turunnya fraksi gel pada konsentrasi yang semakin besar karena faktor jumlah *polymer chain linked* di mana pada kondisi solven yang minimum, hal itu tidak terjadi [7]. Pada dosis radiasi yang tinggi (> 40 kGy) untuk konsentrasi 15 % hingga 30 %, meskipun terjadi degradasi, namun gel tidak larut diduga karena adanya lilitan antar rantai pada matrik gel [3].

Gambar 4 menunjukkan bahwa tidak ada kekuatan tarik untuk gel 10 %, karena tidak terjadi *crosslinking*, sedangkan gel 15 % kekuatan tarik relatif kecil. Pada konsentrasi 15 % ini kepadatan *crosslinked chain polymer* rendah (saling berjauhan) [7] bila dibandingkan dengan konsentrasi 20 % dan 30 %. Dengan demikian semakin tinggi konsentrasi, semakin tinggi pula kekuatan tarik untuk rentang variasi dosis tertentu. Gel dengan konsentrasi 20 % dan 30 % masing-masing mempunyai harga optimal pada 40 dan 80 kGy yaitu 0,5 MPa dan 0,65 MPa. Penurunan kekuatan tarik seiring naiknya dosis radiasi, adalah pertanda adanya proses degradasi, meskipun pada dosis tinggi 100 kGy terlihat adanya kekuatan tarik ini disebabkan oleh faktor lilitan rantai (*inter chain entanglement*) [3,9].

Perpanjangan putus adalah panjang setelah peregangan/tarikan dibanding panjang aslinya, ditampilkan pada Gambar 5. Dari gambar tersebut terlihat bahwa, persen perpanjangan putus bertendensi yang sama dengan kurva kekuatan tarik, yaitu naik kemudian turun dan mencapai harga nol seiring meningkatnya dosis radiasi. Tekstur dari gel 15 % sangat lunak, pada dosis yang tinggi (>40 kGy) menjadi gel yang rapuh. Demikian juga untuk konsentrasi gel 20 % mempunyai persen perpanjangan putus spesifik, di mana masing-masing konsentrasi mempunyai pola bersetimbangan dengan dosis iradiasi. Gel dengan konsentrasi 30 % tidak mempunyai perpanjangan putus,

karena gelnya keras dan juga bersifat rapuh. Kekerasan ini karena faktor tingginya konsentrasi, sementara fraksi gelnya hanya 64% (Gambar 3). Dari berbagai macam sifat mekanik gel metilselulosa yang stabil di atas suhu 32°C dapat digunakan sebagai adesif dan absorben [10].

KESIMPULAN

Hidrogel metilselulosa SM-100 gel akan terikat silang (*crosslink*) secara optimum pada konsentrasi 20 %, dengan dosis radiasi antara 20 kGy - 40 kGy. Untuk kenaikan dosis berikutnya terjadi proses degradasi, sedangkan konsentrasi 30 % diperoleh gel yang keras dan rapuh.

DAFTAR ACUAN

- [1]. ANONIMOUS, http://en.wikipedia.org/wiki/Methyl_cellulose, diakses Maret 2013
- [2]. WACH A. RADOSLAW, Radiation-Induced Crosslinking of Cellulose Ether with Water, *Doctoral Dissertation, Gunma University, Japan*, (2003) 6
- [3]. AMBYAH SULIWARNO, Sintesis hidrogel karboksimetil selulosa (CMC) dengan teknik iradiasi gamma dan karakterisasinya, *Prosiding Seminar Nasional XVIII Kimia dalam Industri dan Lingkungan, Jaringan Kerjasama Kimia Indonesia*, Yogyakarta, (2009) 339-342
- [4]. SARAWUTRIMDUSIT, KORAPAT SOMSAENG, PRARTANA KEWSUWAN, CHANCHIRA JUBSILP and SUNAN TIPTIPAKORN, *Engineering Journal*, **16** (4) (2012) 16-27
- [5]. AMBYAH SULIWARNO, Uji Penetrasi Bakteri Terhadap Hidrogel Karboksimetilselulosa Iradiasi, *Prosiding Seminar Nasional XIII, Kimia Dalam Pembangunan, Jaringan Kerjasama Kimia Indonesia*, Yogyakarta, ISSN No. 0854-4778, (2010) 113-118
- [6]. T. YANG, H. LONG, M. MALKOCH, E. K. GAMSTEDT, L. BERGLUND and A. HULT, *J. of Pol. Sci. Part A: Polymer Chemistry*, **49** (18) (2011) 4044-4054
- [7]. J. M. ROSIAK, P. ULANSKI, A. RZEZNICKI, *Radiation Formation of Hydrogels for Biomedical Applications, Institute of Applied Radiation Chemistry, Technical University of Lodz Wroblewskiego 15, 93-590 Lodz, Poland*, (2002) 32
- [8]. ERIZAL, ZAINAL ABIDIN, DESWITA dan SUDIRMAN, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **12** (3) (2011) 168-174
- [9]. N. C. DAFADER, S. GANGULI, M. A. SATTAR, M. E. HAQUE and F. AKHTAR, *Malaysian Polymer Journal*, **4** (2) (2009) 37-45
- [10]. SREEDHAR THIRUMALA, JEFFRE M. GIMBLE and RAM V. DEVIREDDY, *Cells* **3**, ISSN 2073-4409, (2013) 460-475
- [11]. CHAROEN NAKASON, TOHA WOHWANG, AZIZON KAESAMAN and SUDA KIATKAMJORNWONG, *Carbohydrat Polymers*, **81** (2010) 348-357
- [12]. RUI LIANG, HONGBO YUAN, GUOXI XI, and QINGXIANG ZHOU, *Carbohydrate Polymers*, **77** (2) (2009) 181-187
- [13]. YIAN ZHENG, DAJIAN HUANG and AIQIN WANG, Chitosan-g-poly(Acrylic Acid) Hydrogel with Crosslinked Polymeric Network for Ni⁺² Recovery, *Analytica Chimica Acta*, Elsevier, doi:10.1016/j.aca./201012.026. (2011)