



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**SINTESIS POLIMER SUPERABSORBEN DARI  
HIDROGEL KITOSAN TERIKAT SILANG**

**SKRIPSI**

**SITI PRILIA MUTHOHAROH**

**0806453024**

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM**

**PROGRAM S1 REGULER KIMIA**

**DEPOK**

**JULI 2012**



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**SINTESIS POLIMER SUPERABSORBEN DARI  
HIDROGEL KITOSAN TERIKAT SILANG**

**SKRIPSI**

**Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Sains**

**SITI PRILIA MUTHOHAROH**

**0806453024**

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM**

**PROGRAM S1 REGULER KIMIA**

**DEPOK**

**JULI 2012**

## HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

**Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri, dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk telah saya nyatakan dengan benar.**

**Nama : Siti Prilia Muthoharoh**

**NPM : 0806453024**

**Tanda Tangan :**



**Tanggal : 04Juli 2012**

## HALAMAN PENGESAHAN

**Skripsi ini diajukan oleh :**

Nama : Siti Prilia Muthoharoh

NPM : 0806453024

Program Studi : S1 Reguler Kimia

Judul Skripsi : Sintesis Polimer Superabsorben Dari Hidrogel  
Kitosan Terikat Silang

**Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Sains pada Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia.**

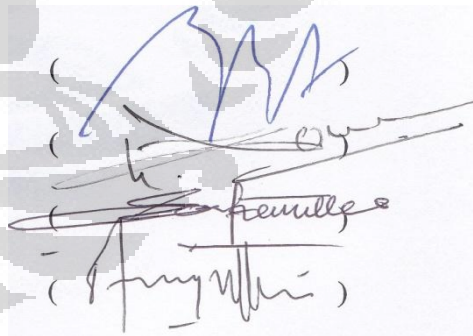
### DEWAN PENGUJI

Pembimbing : Dr. Emil Budianto

Penguji : Prof. Dr. Soleh Kosela, M.Sc

Penguji : Dr. Asep Saefumillah

Penguji : Dr. Yoki Yulizar, M.Sc



Handwritten signatures of the examiners and supervisor, corresponding to the names listed on the left.

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 04Juli 2012

## KATA PENGANTAR

Puji syukur saya panjatkan kepada Allah SWT yang telah melimpahkan berkat dan rahmat-Nya sehingga saya dapat menyelesaikan skripsi ini. Penulisan skripsi ini dilakukan dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Sains Departemen Kimia pada Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia.

Saya menyadari bahwa, tanpa bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak, dari masa perkuliahan sampai pada penyusunan skripsi ini, sangatlah sulit bagi saya untuk menyelesaikan skripsi ini. Oleh karena itu, saya mengucapkan terima kasih kepada :

1. Dr. Emil Budianto selaku dosen pembimbing penelitian yang telah banyak membimbing, mengarahkan, memberi dukungan dan motivasi selama proses penelitian hingga penyusunan skripsi ini dapat diselesaikan dengan baik;
2. Dr. Ridla Bakri, M.Phil selaku Ketua Departemen Kimia FMIPA UI;
3. Dr. Yuni Krisyuningsih Krisnandi S.Si, M.Sc selaku dosen pembimbing akademis yang telah banyak memberi masukan selama masa perkuliahan;
4. Dra. Tresye Utari, M.Si selaku Koordinator Bidang Penelitian Departemen Kimia FMIPA UI;
5. Bapak dan Ibu Dosen Departemen Kimia FMIPA UI yang telah memberikan ilmunya dengan tulus ikhlas selama masa perkuliahan;
6. Ir. Hedi Surrahman, M.Si yang telah membantu dalam pengadaan alat dan bahan untuk penelitian ini;
7. Mba Emma, Mba Tri, Mba Inna, Mba Cucu, Pa Hadi, Pa Mardji, Babeh perpus pa Sutrisno, Pa Amin, dan seluruh staff Departemen Kimia FMIPA UI;
8. Ka Daniel, Ka Zora, dan seluruh Pegawai Afiliasi Departemen Kimia FMIPA UI yang telah banyak membantu dalam penggunaan alat instrumen;

9. Ka Verra selaku Asisten Dosen Dr. Emil Budianto yang telah membantu saya sepenuh hati. Berkat perhatian dan ketegasan kaka, skripsi ini bisa selesai tepat waktu. Makasih buat masukan-masukan positif yang diberikan selama proses penelitian hingga skripsi ini dapat diselesaikan;
10. Teman satu papih, pasangan emas Hidrogel Esti Wijayanti dan Adi Fadhlid, dea dan hafidz. Makasih banyak buat kebersamaan, keceriaan, dukungan, dan masukan-masukan kalian selama penelitian;
11. Syarifah Hasna, Rasti Yunita dan Bapak Erizal dari BATAN yang telah bersedia mendengarkan berbagai curhatan dan memberi banyak masukan semasa penelitian;
12. Teman-teman laboratorium penelitian : Nia, Resti, Andi, Assa, Rina, Hadi, Reza, Irna, Inna, Wanti, Asef, Mita, Prasmita, Helen, Dewi, Mika, Khusnul, Sari, Dilla, Dea, Esti, Adi, Hafidz, Lidya, Putri, Intan, Vina, Ka Widi, Ka Zetri, Bu Ugi, Ka Bibah. Berkat kebersamaan, kerjasama dan semangat kalian penelitian ini dapat terselesaikan;
13. Sahabatku, Harmesa, yang telah membantu memberikan motivasi dan saran selama proses pembuatan proposal penelitian;
14. Terakhir untuk dua orang paling istimewa paling berharga paling dicinta, Bapa dan Umi. Skripsi ini lina persembahkan untuk bapa dan umi yang tak pernah lelah dan tak henti-hentinya mendoakan, mendukung, dan memotivasi lina selama proses penelitian hingga penulisan skripsi ini dapat terselesaikan dengan baik. Terima kasih banyak untuk senyum dan perhatian yang selalu terpancarkan meski peluh keringat tak henti-hentinya mengalir. Mohon maaf untuk segala khilaf lina selama ini. Lina sayang bapa umi karena Allah 😊

Akhir kata, saya berharap segala kebaikan dari semua pihak yang telah membantu diberikan balasan pahala berlipat-lipat oleh Allah SWT. Semoga skripsi ini dapat membawa manfaat bagi pengembangan ilmu.

Jakarta, Juli 2012

**Penulis**

**HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS  
AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS**

---

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan  
dibawah ini :

Nama : Siti Prilia Muthoharoh

NPM : 0806453024

Program Studi : S1 Reguler Kimia

Departemen : Kimia

Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Jenis Karya : Skripsi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada  
Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif** (*Non-exclusive Royalty-  
Free Right*) atas karya ilmiah saya yang berjudul :

**Sintesis Polimer Superabsorben Dari Hidrogel Kitosan Terikat Silang**

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti  
Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan,  
mengalihmedia/format-kan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*),  
merawat, dan mempublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan  
nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok

Pada Tanggal : 04 Juli 2012

Yang Menyatakan



Siti Prilia Muthoharoh)

## ABSTRAK

Nama : Siti Prilia Muthoharoh  
Program Studi : S1Reguler Kimia  
Judul : Sintesis Polimer Superabsorben Dari Hidrogel Kitosan Terikat Silang

Hidrogel superabsorben dapat menyerap dan menahan sejumlah besar larutan. Polimer superabsorben berdasarkan hidrogel kitosan disintesis dengan mengikatsilang kitosan dengan agen pengikat silang yang berbeda, yaitu Formaldehid, Asetaldehid, dan Glutaraldehid. Kemampuan *swelling* hidrogel kitosan terikat silang dilakukan dengan merendam gel dalam media cair dan pengaruh agen pengikat silang terhadap daya absorpsi air telah diamati. Hidrogel kitosan terikat silang dengan asetaldehid memperlihatkan rasio *swelling* paling tinggi hingga 350%. Pengaruh luar yang mempengaruhi seperti pH dan suhu media *swelling* diamati. Hidrogel memperlihatkan perilaku yang khas terhadap pH dan suhu media seperti pada media pH rendah (pH 4) dan suhu tinggi (55°C) *swelling* maksimal sedangkan pada pH tinggi (pH 10) dan suhu rendah (35°C) memperlihatkan *swelling* minimal. Film hidrogel kitosan terikat silang dikarakterisasi menggunakan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR).

Kata Kunci : Superabsorben, Kitosan, Hidrogel, Ikat Silang, *Swelling*  
xii + 60 halaman : 23 gambar, 2 tabel, 10 lampiran  
Daftar Pustaka : 29 (1985-2012)



## ABSTRACT

Name : Siti Prilia Muthoharoh  
Study Program : S1 Regular Chemistry  
Title : Synthesis Superabsorbent Polymer Of Crosslinked  
Chitosan Hydrogel

Superabsorbent hydrogels are able to absorb and retain large amounts of aqueous fluids. Superabsorbent polymer based crosslinked chitosan hydrogels were synthesized by crosslinking chitosan with different crosslinking agents, i.e. formaldehyde, acetaldehyde and glutaraldehyde. The Swelling behavior of the crosslinked chitosan hydrogels was measured by immerse the gels and the effect of crosslinking agent on water absorbency has been investigated. The crosslinked chitosan hydrogel by acetaldehyde exhibited a higher swelling ratio up to 350%. The influence of external stimuli such as pH and temperature of the swelling media has been observed. Hydrogels showed a typical pH and temperature responsive behaviour such as low pH (pH 4) and high temperature (55°C) has maximum swelling while high pH (pH 10) and low temperature (35°C) show minimum swelling. The film of crosslinked chitosan hydrogels were characterized by Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR).

Key Words : Superabsorbent, Chitosan, Hydrogel, Crosslinking, Swelling

xii + 60 pages : 23 pictures, 2 tables, 10 attachment

References : 29 (1998-2012)

## DAFTAR ISI

<b>HALAMAN JUDUL .....</b>	<b>i</b>
<b>HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS .....</b>	<b>ii</b>
<b>HALAMAN PENGESAHAN.....</b>	<b>iii</b>
<b>KATA PENGANTAR.....</b>	<b>iv</b>
<b>HALAMAN PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH .....</b>	<b>vi</b>
<b>ABSTRAK .....</b>	<b>vii</b>
<b>DAFTAR ISI.....</b>	<b>ix</b>
<b>DAFTAR GAMBAR.....</b>	<b>xi</b>
<b>DAFTAR TABEL .....</b>	<b>xii</b>
<b>DAFTAR LAMPIRAN.....</b>	<b>xii</b>
<b>BAB 1 PENDAHULUAN .....</b>	<b>1</b>
1.1. Latar Belakang.....	1
1.2. Perumusan Masalah.....	2
1.3. Tujuan Penelitian.....	2
1.4. Hipotesis .....	3
<b>BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA.....</b>	<b>4</b>
2.1. Polimer Hidrogel .....	4
2.2. Kitosan .....	6
2.3. Ikat Silang ( <i>Crosslink</i> ).....	9
2.4. Agen Pengikat-Silang ( <i>Crosslinking Agent</i> ).....	11
2.5. Rasio Swelling .....	12
<b>BAB 3 METODE PENELITIAN.....</b>	<b>14</b>
3.1. Lokasi Penelitian .....	14
3.2. Alat dan Bahan.....	14
3.2.1. Alat .....	14
3.2.2. Instrumentasi .....	14
3.2.3. Bahan.....	14
3.3. Prosedur Penelitian.....	15
3.3.1 Pembuatan Larutan Asam Asetat 1% (v/v) .....	15
3.3.2 Pembuatan Larutan Kitosan 2% (w/v).....	15

3.3.3. Pembuatan Hidrogel Ksitosan.....	15
3.3.4. Pembuatan Film Hidrogel Kitosan .....	16
3.3.5. Penentuan Swelling Hidrogel Kitosan .....	16
3.3.6. Penentuan Derajat Ikat Silang ( <i>degree of crosslinking</i> ) Hidrogel Kitosan.....	17
3.3.7. Penentuan Hidrogel Kitosan Terikat Silang dengan FTIR.....	17
<b>BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN .....</b>	<b>18</b>
4.1. Pengaruh Waktu Reaksi Ikat Silang Optimum Hidrogel Kitosan.....	18
4.2. Pengaruh Jenis dan Komposisi Agen Pengikat Silang Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang .....	22
4.3. Pengaruh pH Medium <i>Swelling</i> Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang .....	33
4.4. Pengaruh Suhu Medium <i>Swelling</i> Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang .....	36
<b>BAB 5 KESIMPULAN DAN SARAN .....</b>	<b>38</b>
5.1. Kesimpulan.....	38
5.2. Saran .....	38
<b>DAFTAR PUSTAKA .....</b>	<b>39</b>

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1.1.	Struktur Polimer.....	4
Gambar 2.1.2.	Gambar Ilustrasi Hidrogel dan sebelum dan sesudah mengembang ( <i>Swelling</i> ) .....	6
Gambar 2.2.1.	Struktur Dan Serbuk Kitosan.....	7
Gambar 2.2.2.	Konversi Kitin Menjadi Kitosan.....	8
Gambar 2.3.1.	Struktur Polimer yang Terikat-silang .....	10
Gambar 2.3.2.	Perbedaan Polimer Termoplastik dan Polimer Termoset .....	11
Gambar 2.4.	Struktur Agen Pengikat Silang .....	12
Gambar 4.1.1.	Larutan Kitosan 2% (w/v) .....	19
Gambar 4.1.2	Larutan Hidrogel Kitosan Terikat Silang dengan (a) Formaldehid 0,1M (b) Glutaraldehid 0,1M (c) asetaldehid 0,1M .....	20
Gambar 4.1.3	Film Hidrogel Kitosan Kering Terikat Silang dengan (a) Formaldehid 0,1M (b) Glutaraldehid 0,1M (c) Asetaldehid 0,1M.....	20
Gambar 4.1.4.	Kurva Persen Rasio Swelling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Dengan Waktu Reaksi Ikat Silang Bervariasi .....	21
Gambar 4.2.1.	Spektrum FTIR Serbuk Kitosan .....	22
Gambar 4.2.2.	Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang.....	23
Gambar 4.2.3.	Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan Dengan Formaldehid .....	24
Gambar 4.2.4.	Memperlihatkan Penampakan Fisik Uji Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan.....	26
Gambar 4.2.5.	Persen Derajat Ikat Silang Film Hidrogel Kitosan Terikat Silang dengan Jenis dan Volume Agen Pengikat Silang Bervariasi .....	27
Gambar 4.2.6.	Struktur Formaldehid, Asetaldehid dan Glutaraldehid .....	28
Gambar 4.2.7.	Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan .....	29
Gambar 4.2.8.	Hubungan Antara Persen Rasio <i>Swelling</i> dengan Persen Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan .....	31
Gambar 4.2.9.	Persen Rasio <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan dengan Variasi Jumlah Agen Pengikat Silang (mL).....	33
Gambar 4.3.1.	Proses Protonasi Dan Deprotonasi Gugus Amina Pada Kitosan .....	34
Gambar 4.3.2.	Pengaruh pH Medium Terhadap Persen Rasio <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan.....	36
Gambar 4.4.	Pengaruh Suhu Medium Terhadap Persen Rasio <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan.....	37

## DAFTAR TABEL

Tabel 3.3.3.	Variasi Komposisi Agen Pengikat-Silang Hidrogel Kitosan Terikat Silang Untuk Masing-Masing Agen Pengikat Silang Yang Digunakan .....	16
Tabel 4.1.	Deskripsi Variasi Jenis dan Komposisi Agen Pengikat Silang serta Waktu Reaksi Ikat Silang .....	19

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1.	Diagram Alir Penelitian .....	42
Lampiran 2.	Data Pengujian Waktu Reaksi Ikat Silang Optimum .....	43
Lampiran 3.	Data Pengujian Persen Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan .....	44
Lampiran 4.	Data Pengujian <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan Terikat Silang .....	46
Lampiran 5.	Data Pengujian <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan Dalam pH Medium Berbeda .....	49
Lampiran 6.	Data Pengujian <i>Swelling</i> Hidrogel Kitosan Dalam Suhu Medium Berbeda.....	53
Lampiran 7.	Spektrum FTIR Serbuk Kitosan .....	57
Lampiran 8.	Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Formaldehid 0,1M .....	58
Lampiran 9.	Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid 0,1M .....	59
Lampiran 10.	Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Glutaraldehid 0,1M .....	60

# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Hidrogel Superabsorben adalah suatu istilah mencakup jenis polimer yang berbasis kemampuan mengabsorpsi sejumlah kuantitas air. Hidrogel superabsorben ini sangat efektif mengabsorpsi air atau cairan biologisnya (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010; Spagnola, Cristiane., *et al.* 2012). Pada hakikatnya hidrogel superabsorben adalah polimer berikatan silang yang mempunyai kemampuan mengabsorpsi air ratusan kali beratnya, tidak larut dalam air karena adanya struktur tiga dimensi pada jaringan polimernya. Hidrogel superabsorben merupakan materi yang sangat menarik karena sifat kelarutannya dan daya angkut air yang unik. Karena sifat yang unik tersebut, pada beberapa tahun belakangan ini dilakukan penelitian dan pengembangan hidrogel superabsorben secara intensif untuk aplikasi di bidang kesehatan, farmasi, kimia, pengemas makanan, pembuatan kertas, industri holtikultura, dan pengeboran minyak. (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010)

Dalam beberapa tahun terakhir, pengembangan hidrogel dari bahan polimer alam yang biodegradabel dan biokompatibel menjadi pusat perhatian para ilmuwan (Abdel-Mohzen, A.M., *et al.* 2011). Namun, hidrogel memiliki kekuatan mekanik yang rendah. Untuk memperkuat strukturnya, hidrogel diikat-silang (*crosslink*). Terdapat banyak senyawa kimia yang digunakan sebagai agen pengikat silang seperti senyawa epoksi dan aldehida, misalnya *epichlorohydrin* (ECH) dan glutaraldehid, (Aly, A.S. 1998).

Salah satu bahan yang berpotensi sebagai absorben adalah kitosan yang merupakan sebuah kopolimer dari 2-glukosamin dan N-asetil-2 glukosamin, senyawa turunan dari kitin yang bersifat ramah lingkungan, diantaranya biodegradabel, biokompatibel, biofungsional dan bioadsorbabel (Chunyu Chang, *et al.* 2010; Chengjun Zhou, *et al.* 2011; Shu-Guang Wang, *et al.* 2008). Diantara polimer biodegradabel lainnya, kitosan, suatu

polisakarida linear merupakan senyawa kimia yang baik untuk sintesis hidrogel karena memiliki kemampuan ikat silang (*crosslink*) yang lebih besar dengan adanya gugus amino (-NH<sub>2</sub>). (Singh, A., *et al.*2006).

Pada penelitian ini polimer superabsorben dari hidrogel kitosan yang terikat silang dengan agen pengikat silang bervariasi. Material yang terlibat dalam pembuatan polimer hidrogel ini adalah serbuk kitosan, formaldehid, asetaldehid dan glutaraldehid sebagai agen pengikat silang, serta asam asetat glasial sebagai pelarut. Selanjutnya polimer hidrogel ini dikarakterisasi dengan FTIR.

## 1.2 Perumusan Masalah

Hidrogel memiliki kestabilan kimia dan sifat mekanik yang rendah, yang dapat memungkinkan kestabilannya menurun sehingga suatu saat hidrogel dapat hancur dan larut dalam mediumnya (Abdul-Mohzen, A.M., *et al.* 2011). Untuk mengubah struktur kimia polimer dapat dilakukan melalui proses ikat silang. Perilaku absorpsi (*swelling*) hidrogel ini bergantung pada karakteristik struktur kimia dan medianya (Singh, A., *et al.* 2006).

## 1.3. Tujuan Penelitian

Penelitian ini dilakukan untuk menghasilkan polimer superabsorben dari hidrogel kitosan terikat silang dengan agen pengikat silang yang bervariasi, yaitu formaldehid, asetaldehid, dan glutaraldehid, guna menentukan komposisi dan kondisi optimum untuk menghasilkan hidrogel kitosan terikat silang yang memiliki sifat mekanik dan daya absorb yang baik. Selain itu dilakukan variasi pH dan suhu pada medium mengembang (*swelling*) hidrogel kitosan guna mengetahui kondisi medium yang baik untuk pengembangan (*swollen*) optimum hidrogel kitosan.

#### 1.4 Hipotesis

Hipotesis dari penelitian ini adalah polimer superabsorben dari hidrogel kitosan dapat dihasilkan dari reaksi ikat silang kitosan dengan agen pengikat silang dan komposisi yang berbeda. Variasi agen pengikat-silang (yaitu dengan formaldehid, asetaldehid dan glutaraldehid), komposisi agen pengikat-silang (yaitu 1mL, 1,5mL dan 2mL) dan waktu reaksi ikat silang (yaitu 30 menit, 60 menit dan 120 menit) akan mempengaruhi kekuatan struktur terikat-silangnya yang akan berpengaruh pada kemampuan daya absorb hidrogel kitosan terhadap mediumnya. Semakin banyak komposisi agen pengikat silang dan semakin lama waktu reaksi ikat silang yang digunakan akan membuat stukturanya semakin kuat yang dibuktikan dengan semakin tinggi derajat ikat-silangnya. Sehingga daya absorb dan kemampuan mengembang (*swelling*) hidrogel terhadap mediumnya akan berkurang.

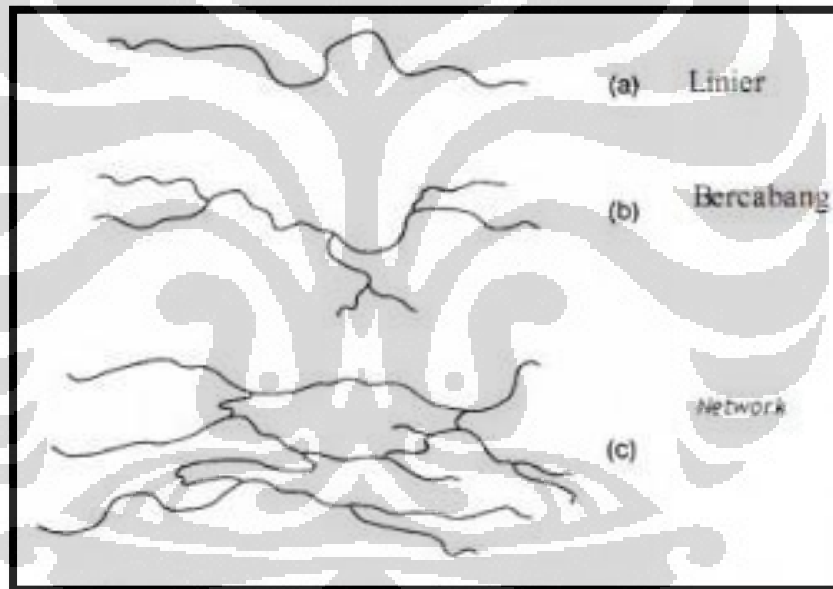


## BAB 2

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Polimer Hidrogel

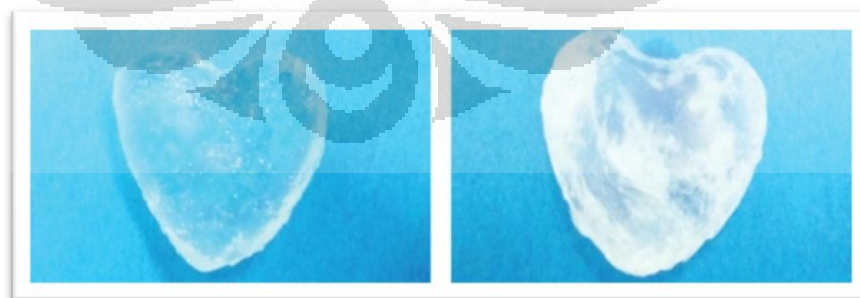
Polimer merupakan suatu makromolekul yang tersusun dari unit sederhana secara berulang yang disebut monomer, yang biasanya dihubungkan dengan ikatan kimia kovalen maupun interaksi non kovalen, dan memiliki massa molekul relative ( $M_r$ ) yang besar. Struktur polimer tidak hanya yang linier (rantai lurus), ada juga yang bercabang dan membentuk jaringan ikat silang (network). Gambar 2.1.1 memperlihatkan struktur polimer.



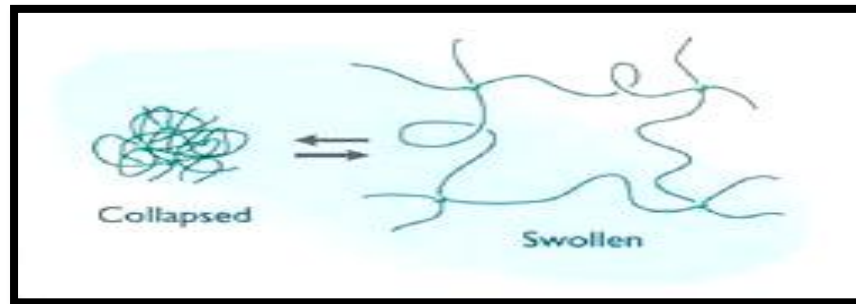
**Gambar 2.1.1 Struktur Polimer**

Hidrogel merupakan jaringan tiga dimensi polimer hidrofilik yang mampu menyerap dan mempertahankan air atau cairan biologis hingga ribuan kali berat keringnya. Hidrogel mungkin memiliki kestabilan kimiawi yang pada akhirnya akan terdegradasi dan larut. Untuk menghindari terjadinya pelarutan/degradasi, pengontrolan pengikat silang diperkenalkan dalam hidrogel. Hidrogel ini sangat bermanfaat dalam aplikasi medis dan bioseparasi (Singh, A., *et al.* 2006).

Hidrogel merupakan suatu jaringan rantai polimer hidrofilik yang saling terikat silang satu sama lain dan memiliki kemampuan absorpsi yang tinggi, hingga lebih dari 99,9% (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010). Gugus fungsi hidrofilik yang terdapat pada hidrogel diantaranya  $-OH$ ,  $-COOH$ ,  $-CONH_2$ , and  $-SO_3H$ , yang dapat menyerap air tanpa larut (Bajpai, A. K. & Giri, A. 2002). Hal ini karena molekul-molekulnya terikat silang secara kimia maupun fisika dari rantai polimer hidrofilik (Schacht, E. 1996). Hidrogel memiliki biokompatibilitas yang sangat baik. Ini karena hidrogel memiliki beberapa sifat unik yang membuat mereka sangat biokompatibel. Pertama, hidrogel memiliki tegangan antarmuka yang rendah dengan cairan biologis dan jaringan disekitarnya. Ini menurunkan gaya yang digunakan untuk adsorpsi pelarut dan gaya adhesi sel. Kedua, kandungan airnya sangat tinggi karena permukaan hidrogel sangat hidrofilik dan mampu menstimulasi beberapa sifat jaringan dari alam dengan kadar air yang tinggi. Hal ini membuatnya sangat biokompatibel. Dan ketiga adalah sifatnya yang lunak dapat meminimalkan iritasi mekanik dan gesekan pada jaringan di sekitarnya (Abdel-Mohsen, A M., *et al.* 2011). Dengan demikian, hidrogel sangat potensial untuk membawa makromolekul bioaktif dalam keadaan mengembangnya (Rohindra, David R., *et al.* 2004), sehingga hidrogel juga dapat digunakan untuk aplikasi di berbagai bidang kesehatan. Berikut ini (Gambar 2.1.2) merupakan gambar ilustrasi penampakan fisik dan struktur hidrogel sebelum dan sesudah mengembang (*swelling*).



**(a) Penampakan Fisik Hidrogel**



### (b) Struktur Hidrogel

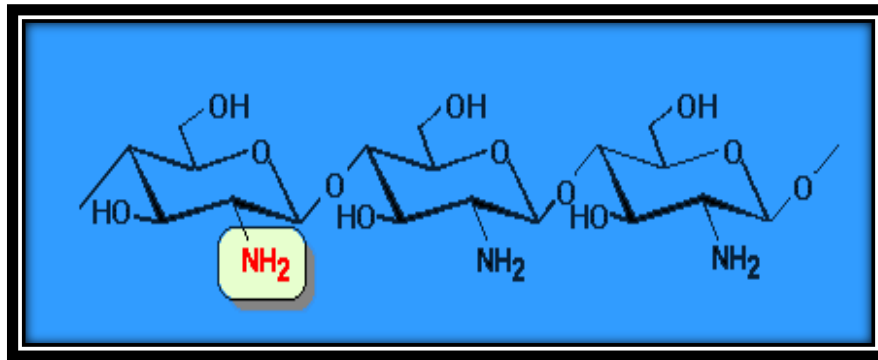
**Gambar 2.1.2 Gambar Ilustrasi Hidrogel sebelum dan sesudah mengembang (Swelling)**

Umumnya hidrogel dikenal sebagai bahan biokompatibel karena memiliki kandungan air yang tinggi. Hidrogel telah digunakan dalam berbagai aplikasi biomaterial dan bioteknologi, seperti dalam teknik jaringan, sistem pengantar obat, dan organ tiruan (Abdel-Mohsen, A M., *et al.* 2011).

## 2.2 Kitosan

Kitosan adalah polisakarida linear diturunkan dari rangka luar (eksoskeleton) hewan *crustacean* (kitin). Kitosan mewakili nama sebagian atau secara keseluruhan kitin yang terdeasetilasi, sehingga secara garis besar kitosan adalah kopolimer yang terdiri dari senyawa glukosamin dan N-asetilglukosamin. Ini sangat penting bahwa kitosan tidak terbentuk dari struktur satu senyawa yang sama sehingga kitosan memiliki berat molekul dan derajat deasetilasi yang berbeda. Keistimewaan dari struktur kitosan yang unik adalah adanya amina primer pada posisi C-2 glukosamin. (Hyunmin Yi, *et al.* 2005)

Pada Gambar 2.2.1 berikut ini memperlihatkan struktur kitosan dan penampakan fisik serbuk kitosan yang digunakan.



(a) Struktur Kitosan



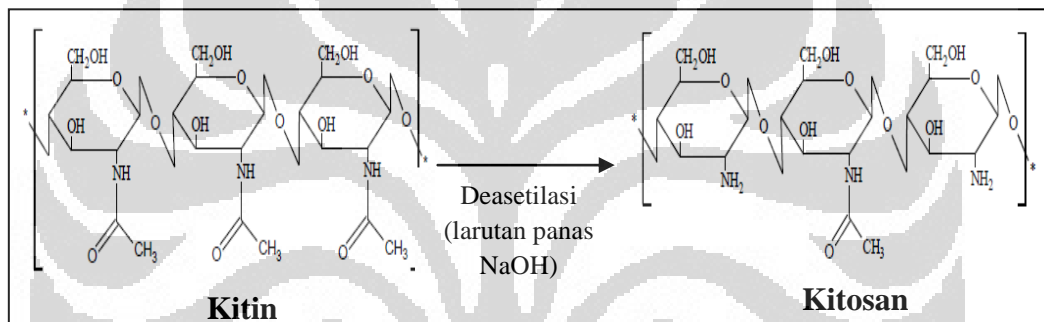
(b) Serbuk Kitosan

### Gambar 2.2.1. Struktur dan Serbuk Kitosan

Kitosan telah digunakan secara luas dalam berbagai bidang, dari pengolahan limbah, pemrosesan pangan, bidang kesehatan, dan bioteknologi. Selain itu kitosan merupakan material penting dalam aplikasi bidang farmasi karena sifatnya yang biodegradabel, biokompatibel, antimikroba, dan non-toksik. Kitosan dapat dilarutkan dalam asam organik seperti asam laktat dan asam asetat sebelum dibentuk menjadi film. Kitosan memiliki kemampuan untuk membentuk film, hal tersebut memungkinkan penggunaan yang luas dalam aplikasi pada bidang kesehatan seperti pada sisem pengantar obat. Kitosan dapat dikarakterisasi dalam hal kualitasnya, sifat intrinsiknya (kemurnian, berat molekul, viskositas, dan derajat deasetilasi), dan sifat fisiknya. Kualitas produk kitosan berbeda-beda karena banyak faktor proses pengolahannya yang mempengaruhi karakter produk akhir kitosan. Variasi dalam metode preparasi kitosan menghasilkan perbedaan dalam derajat deasetilasi, distribusi gugus asetil, viskositas, dan berat molekulnya. Kitosan

komersial biasanya memiliki derajat deasetilasi bervariasi mulai dari 70-% sampai 95%, dan berat molekul mula dari 50 sampai 2000 kDa.

Kitosan dibuat dari konversi kitin melalui proses enzimatik atau deasetilasi alkali. Metode yang kedua merupakan metode yang umum digunakan untuk produksi kitosan, yaitu dengan deasetilasi kitin dengan menggunakan NaOH berlebih sebagai reagen dan air sebagai pelarut. Selama proses deasetilasi, bagian ikatan N-asetil dalam polimer kitosan diputus dengan pembentukan gugus D-glukosamin, yang terdiri dari gugus amina bebas sehingga meningkatkan kelarutan polimer tersebut dalam air. Metode ini biasanya memberikan hasil (*yield*) sampai 98%.



**Gambar 2.2.2. Konversi Kitin Menjadi Kitosan**

Proses deasetilasi ialah eliminasi gugus asetil dari gugus fungsi amida pada rantai molekul kitin, menghasilkan molekul (kitosan) dengan derajat gugus amino ( $\text{NH}_2$ ) reaktif yang tinggi. Pemanfaatan kitosan sangat bergantung pada tingginya derajat gugus amino yang reaktif ini. Hal ini menjadikan derajat deasetilasi (DD) sifat yang penting dalam produksi kitosan karena DD mempengaruhi sifat fisikokimia dan sifat biodegradabilitas serta berkaitan dengan pengaruh kinerjanya pada aplikasi di berbagai bidang. DD dapat digunakan untuk membedakan kitin dan kitosan karena DD menentukan langsung jumlah gugus amino bebas dalam polimer tersebut.

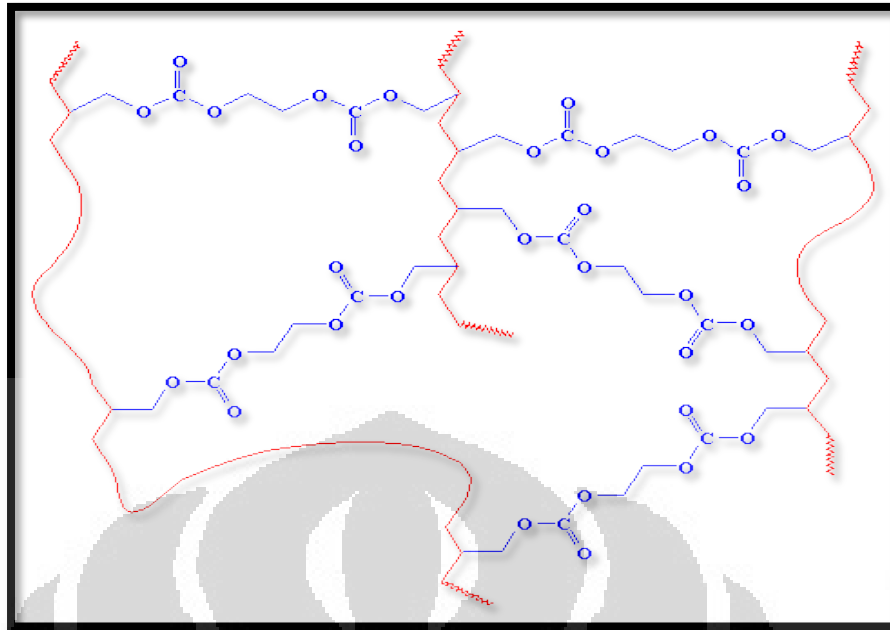
DD kitosan bervariasi mulai dari 70-95%, dengan rata-rata sekitar 80%, bergantung pada hewan *crustacean* yang menjadi sumber kitin dan metode preparasinya. Semakin tinggi nilai DD, artinya semakin banyak gugus

amida yang gugus asetilnya tereliminasi, yang berarti juga semakin banyak gugus amino bebas dalam kitosan tersebut. Biasanya kitin dengan DD diatas 75% disebut sebagai kitosan.

### 2.3 Ikat Silang (*Crosslink*)

*Crosslink* (ikat silang) merupakan suatu ikatan yang menghubungkan satu rantai polimer dengan rantai polimer lainnya, dapat berupa interaksi kovalen maupun interaksi non kovalen dan dapat meningkatkan massa molekul polimer. Hidrogel yang terikat-silang secara kovalen disebut gel kimia sedangkan secara non kovalen disebut gel fisik (Hennik dan Nostrum, 2002). Gel fisik adalah jaringan tiga dimensi dimana ikatan rantai polimernya memiliki interaksi non kovalen. Cara untuk membentuk ikat silang secara fisik yaitu dengan interaksi hidrofobik, interaksi muatan, atau dengan membentuk ikatan hidrogen. Metode ikat silang kimia meliputi polimerisasi radikal, reaksi kimia dari gugus komplementer, energi tinggi irradiasi dan penggunaan enzim. Pada ikat silang kimia, dibutuhkan agen pengikat silang yang mungkin dapat bereaksi dengan zat-zat lainnya (Berg., *et al.* 2010).

Ikat-silang dapat digunakan dengan baik dalam polimerisasi bahan sintetik maupun polimerisasi bahan alam. Namun ketika suatu polimer terikat silang dengan senyawa agen pengikat silang, maka polimer tersebut akan kehilangan beberapa sifat yang dimiliki oleh monomer penyusunnya. Sifat mekanik yang dihasilkan sangat bergantung pada densitas agen pengikat-silangnya. Densitas yang rendah akan menurunkan viskositas polimer dalam bentuk cairnya. Densitas menengah dapat membuat polimer memiliki sifat elastomer dan daya potensial tinggi. Dan densitas yang sangat tinggi dapat menyebabkan polimer menjadi sangat keras dan kaku. Berikut ini (Gambar 2.3.1) merupakan gambar struktur polimer yang terikat silang.



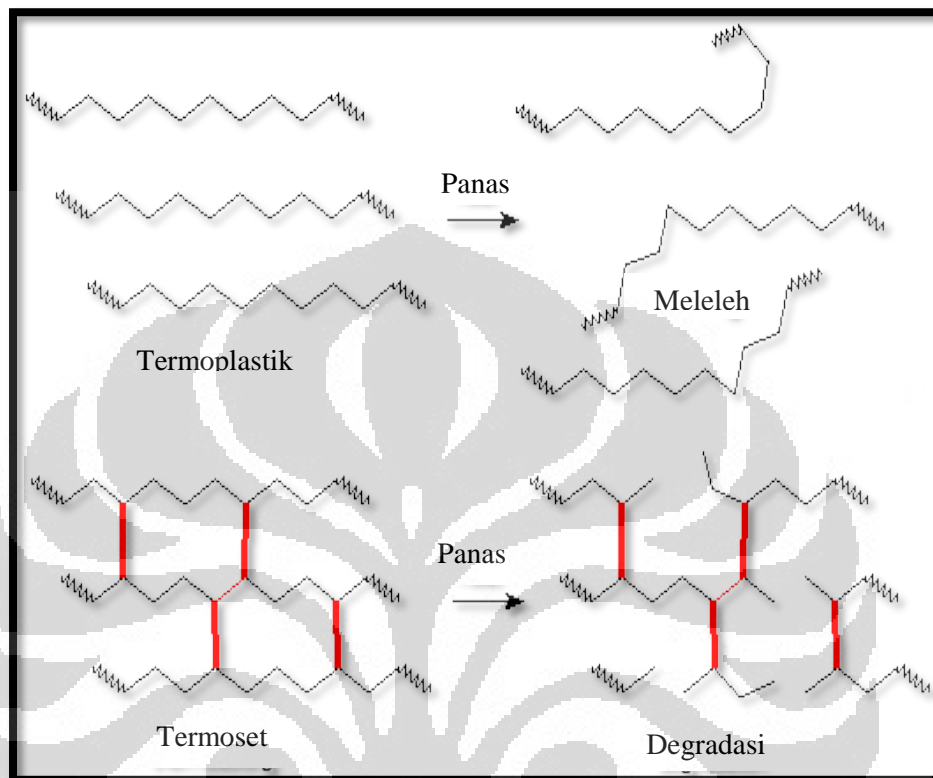
**Gambar 2.3.1 Struktur Polimer Terikat Silang**

Sifat polimer yang dapat ditingkatkan dengan reaksi ikat-silang meliputi :

- Sifat mekanik, seperti *tensile strength*
- Daya tahan terhadap goresan
- Kinerja pada suhu tinggi, seiring dengan peningkatan suhu leleh
- Ketahanan terhadap bahan kimia karena kelarutannya rendah dalam pelarut organik

Ikatan silang dapat dibentuk melalui reaksi kimia yang diprakarsai oleh panas, perubahan tekanan, pH atau radiasi. Ikatan silang juga dapat diinduksi ke dalam bahan termoplastik melalui paparan sumber radiasi, seperti paparan sinar elektron, radiasi gamma, maupun sinar UV. Seringkali, polimer yang terikat silang tidak dapat terurai jika dipanaskan (tidak meleleh) sehingga bentuknya tidak dapat dirubah ke bentuk lain yang disebut dengan polimer termoset. Ikatan silang kimia kovalen pada polimer ini memiliki kestabilan termal dan mekanik yang tinggi, sehingga sangat sulit didegradasi. Sedangkan polimer terikat silang yang dapat didaur ulang dengan mengubah bentuknya ke bentuk lain dengan pemanasan atau dengan melarutkannya ke dalam pelarut yang cocok disebut polimer termoplastik. Dengan demikian,

perlu diselidiki derajat ikat silang optimum yang memiliki sifat relatif kuat dan cukup elastis. Gambar 2.3.2 memperlihatkan perbedaan polimer termoplastik dan polimer termoset.



**Gambar 2.3.2 Perbedaan Polimer Termoplastik dan Polimer Termoset**

#### 2.4 Agen Pengikat Silang (*Crosslinking Agent*)

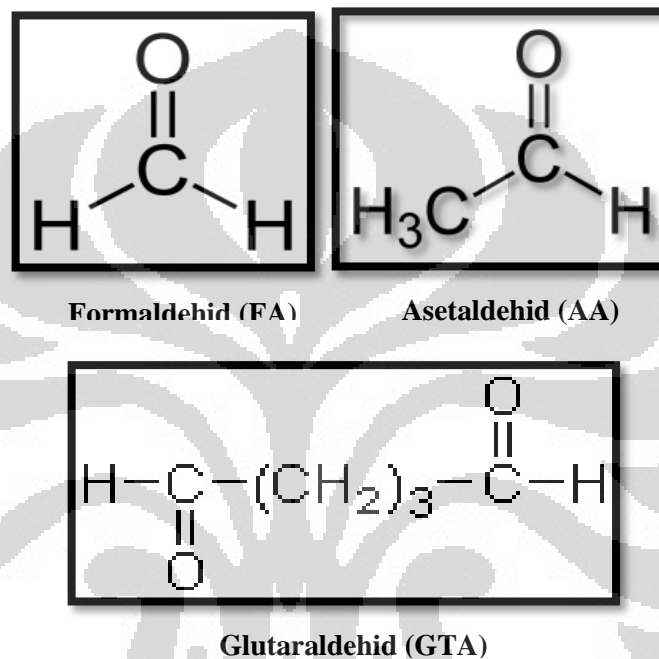
Agen pengikat silang dibutuhkan dalam membuat polimer jaringan hidrogel karena struktur jaringan ini yang dapat menentukan daya absorb terhadap medium cair dan kemampuan mengembang (*swelling*) suatu hidrogel. Perubahan dari derajat ikat silang dimanfaatkan untuk memperoleh sifat mekanik yang diinginkan. Peningkatan derajat ikat silang suatu hidrogel akan menghasilkan gel yang lebih kuat.

Terdapat berbagai macam agen pengikat silang yang dapat mengikatsilang kitosan. Diantaranya adalah adehid dan anhidrida, seperti formaldehid, asetaldehid, glutaraldehid, anhidrida asetat dan lainnya yang



biasa digunakan sebagai agen pengikat silang karena biayanya yang murah dan mudah didapatkan. Kapasitas mengikatsilang, sifat hidrofilik dan efisiensi retensi air hidrogel bergantung pada agen pengikatsilang (Singh, A., *et al.* 2005).

Pada penelitian ini digunakan tiga jenis agen pengikat silang yaitu Formaldehid (FA), Asetaldehid (AA) dan Glutaraldehid (GTA). Struktur dari agen pengikat silang tersebut dapat dilihat pada Gambar 2.4 berikut:



**Gambar 2.4. Struktur Agen Pengikat Silang**

## 2.5 Rasio Swelling

Hidrogel, sebuah jaringan polimer tiga dimensi tidak akan benar-benar terlarut, tetapi dapat menyerap sejumlah besar pelarut yang sesuai. Pada penelitian sebelumnya (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010) menyatakan bahwa teori kesetimbangan *swelling* merupakan studi teoritis dari suatu jaringan hidrogel yang dapat digunakan untuk menentukan struktur dan konfigurasi dari rantai serta menganalisis kinetika suatu hidrogel. Jika polimer hidrogel mengembang (*swelling*) dalam mediumnya, ini menunjukkan bahwa hidrogel mampu mengadsorb medium cairnya tanpa larut didalamnya. Peningkatan

entropi menyertai fenomena *swelling* karena volume polimer bertambah dengan banyaknya molekul medium cair yang teradsorb didalam struktur jaringannya. Pada proses *swelling*, kemampuan me-ngembangnya akan meningkat dengan menurunnya kemampuan pelarutan. (Gooch, Jan W. 2002). Kesenimbangan berat rasio *swelling* dapat digunakan untuk menggambarkan derajat *swelling* dan dapat diukur dengan teknik gravimetri (Berg., *et al.* 2010). Hidrogel direndam dalam air destilasi hingga mencapai keadaan kesetimbangan. Lalu diambil dan setelah sisa air dihilangkan, kemudian ditimbang. Pengukuran persen rasio swelling dapat ditentukan dengan rumus berikut :

$$S(\%) = ((W_s - W_d)/W_d) \times 100$$

(Abdel-Mohsen, A.M., *et al.* 2011. p 1006)

Dimana,  $W_s$  = berat *swollen* hidrogel, dan  $W_d$  = berat kering dari hidrogel.

Terdapat banyak teknik yang mempelajari tentang struktur jaringan polimer yang terikat silang maupun yang tidak terikat silang. Apabila suatu polimer yang terikat silang dimasukkan ke dalam suatu pelarut, maka polimer ini akan mengembang (*swelling*) tanpa larut didalamnya sehingga total volumenya bertambah. Sedangkan fraksi yang larut dari bahan polimer tersebut akan larut dan berdifusi keluar dari polimer yang mengembang. Bahan pengikat silang ini akan mengembang dalam fase gel polimer tiga dimensi hingga mencapai kekuatan osmotik yang seimbang dengan regangan rantai polimer tersebut. Semakin banyak rantai yang berikatan silang dalam suatu polimer, kemampuan mengembangnya akan menurun dan gel menjadi semakin keras/kuat. (Gooch, Jan W. 2002).

## BAB 3

### METODE PENELITIAN

Pada penelitian ini dilakukan pembuatan polimer superabsorben dari hidrogel kitosan terikat silang. Agen pengikat-silang yang digunakan adalah formaldehid (FA), asetaldehid (AA) dan glutaraldehid (GTA). Polimer hidrogel kitosan yang dihasilkan berupa film dan dilakukan uji kemampuan daya adsorb (*swelling*) dengan kondisi pH dan suhu medium yang bervariasi serta di-karakterisasi menggunakan FTIR.

#### 3.1 Lokasi Penelitian

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Penelitian Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia.

#### 3.2 Alat dan Bahan

##### 3.2.1 Alat

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini adalah peralatan gelas, kertas saring, *stirrbar*, *stirring hotplate*, termometer, dan pH-meter. Peralatan ini telah tersedia di Laboratorium Penelitian Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia.

##### 3.2.2 Instrumentasi

Alat instrumentasi yang digunakan pada penelitian ini adalah neraca analitis, *oven microwave* (Toshiba ER-562 ETE 960 watt), FT-IR (IRPrestige-21, Shimadzu).

##### 3.2.3 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah serbuk kitosan yang memiliki berat molekul rata-rata 200.000 g/mol dan derajat deasetilasi 85% diperoleh dari PT. Biotech Surindo. Larutan formaldehid 37% (Merck-Darmstadt, F R Germany), larutan asetaldehid 99% (Merck-

Schuchardt, Germany), dan larutan glutaraldehid 70% (Sigma-Aldrich Chemie). Seluruh bahan-bahan ini digunakan tanpa dimurnikan terlebih dahulu.

### 3.3 Prosedur Penelitian

#### 3.3.1 Pembuatan Larutan Asam Asetat 1% (v/v)

Sebanyak 1 mL asam asetat glasial diencerkan dalam labu ukur 100 mL dengan aquades hingga tanda batas sehingga didapatkan larutan asam asetat 1% (v/v). Larutan asam asetat 1% (v/v) ini berfungsi sebagai pelarut kitosan.

#### 3.3.2 Pembuatan Larutan Kitosan 2% (w/v)

Sebanyak 2 gram serbuk kitosan ditimbang dan dilarutkan dalam 100 mL larutan asam asetat 1% (v/v). Proses pelarutan dilakukan dengan pengadukan menggunakan *stirring hotplate* pada suhu ruang (Abdel-Mohsen, A.M., *et al.* 2011; Chengjun Zhou, *et al.* 2011).

#### 3.3.3 Pembuatan Hidrogel Kitosan

Untuk membuat hidrogel kitosan, ditambahkan agen pengikat silang dengan komposisi yang berbeda ke dalam larutan kitosan 2% (w/v). Agen pengikat silang yang digunakan adalah larutan formaldehid 0,1M, larutan asetaldehid 0,1M dan larutan glutaraldehid 0,1M. Reaksi ikat-silang dilakukan dengan pengadukan menggunakan *stirring hotplate* pada suhu ruang pada waktu reaksi yang berbeda, yaitu selama 30 menit, 60 menit, dan 120 menit. Berikut ini adalah variasi komposisi agen pengikat-silang yang digunakan :

**Tabel 3.3.3 Variasi Komposisi Agen Pengikat-Silang Hidrogel Kitosan Terikat Silang Untuk Masing-Masing Agen Pengikat Silang Yang Digunakan**

<b>Nama Label</b>	<b>Volume Larutan Kitosan (mL)</b>	<b>Volume <i>crosslinker</i> (mL)</b>
Variasi A	20	1
Variasi B	20	1,5
Variasi C	20	2

### 3.3.4 Pembuatan Film Hidrogel Kitosan

Larutan hidrogel kitosan yang telah dihasilkan dituangkan ke dalam wadah pencetak, dikeringkan semalam pada temperatur ruang, kemudian dioven pada suhu 60<sup>0</sup>C untuk menyempurnakan proses pengeringan (Baroni, P., *et al.* 2008).

### 3.3.5 Penentuan Swelling Hidrogel Kitosan

Berat kering film hidrogel kitosan yang dihasilkan ditimbang. Kemudian film hidrogel kitosan tersebut direndam dalam medium cairnya selama 30 menit. Medium cair yang digunakan adalah aquades pada suhu ruang, 35<sup>0</sup>C, 45<sup>0</sup>C, dan 55<sup>0</sup>C. Serta untuk variasi pH digunakan larutan pH 4, pH 7 dan pH 10. Setelah perendaman selama 30 menit dilakukan *blotting*, yaitu penghilangan sisa-sisa air di permukaan hidrogel *swollen* (mengembang) dengan menggunakan kertas saring. Berat film hidrogel kitosan *swollen* (mengembang) ditentukan dengan penimbangan menggunakan neraca analitis.

Rasio Swelling dapat ditentukan dengan :

$$\% \text{ Swelling} = \frac{W_s - W_d}{W_d} \times 100$$

(Chengjun Zhou, *et al.* 2011. p 157)

Dimana  $W_s$  adalah berat hidrogel kitosan saat *swollen* dan  $W_d$  adalah berat hidrogel kitosan saat kering (*dry*) sebelum swelling (Chengjun Zhou, *et al.* 2011).

### 3.3.6 Penentuan Derajat Ikat Silang (*degree of crosslinking*) Hidrogel Kitosan

Berat kering film hidrogel kitosan yang dihasilkan ditimbang. Kemudian film hidrogel kitosan tersebut direndam dalam pelarutnya (asam asetat 1%) selama 24 jam. Setelah perendaman, hidrogel kitosan dioven pada temperatur  $60^{\circ}\text{C}$  hingga kering. Berat kering film hidrogel kitosan setelah perendaman ditentukan dengan penimbangan menggunakan neraca analitis.

Derajat Ikat Silang (*degree of crosslinking*) dapat ditentukan dengan :

$$\%DC = \frac{W_g}{W_0} \times 100$$

(Abdel-Mohsen, A.M., *et al.* 2011. p 1006)

Dimana  $W_g$  adalah berat hidrogel kitosan kering setelah perendaman dan  $W_0$  adalah berat hidrogel kitosan kering sebelum perendaman (Abdel-Mohsen, A.M., *et al.* 2011).

### 3.3.7 Penentuan Struktur Hidrogel Kitosan dengan FTIR

Film hidrogel kitosan terikat silang dihaluskan terlebih dahulu dan dibuat pellet bersama KBr dengan tekanan tinggi kemudian dimasukkan ke dalam keping sel. Keping sel yang telah berisi sampel diletakkan pada tempat sel yang dilalui berkas sinar. Rekorder dijalankan dari bilangan gelombang  $4000\text{ cm}^{-1}$  hingga  $650\text{ cm}^{-1}$  dan spektra sampel dianalisis dengan membandingkan spektra gugus fungsinya.

## BAB 4

### HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini akan dilakukan pembuatan polimer super-absorben dari hidrogel kitosan terikat silang dengan agen pengikat-silang dan komposisinya yang bervariasi. Pada penelitian ini digunakan serbuk kitosan sebagai bahan dasar pembuatan hidrogel terikat silang dengan menggunakan agen pengikat silang formaldehid, asetaldehid, dan glutaraldehid.

Mula-mula ditentukan waktu reaksi ikat silang optimum untuk mendapatkan hidrogel dengan sifat mekanik yang baik, kemudian dipelajari pengaruh dari konsentrasi dan jenis agen pengikat silang serta pengaruh pH dan suhu medium cair terhadap daya absorpsi hidrogel berdasarkan kemampuan mengembang (*swelling*) hidrogel kitosan yang dihasilkan. Selanjutnya polimer hidrogel ini dikarakterisasi FTIR.

#### 4.1 Penentuan Waktu Reaksi Ikat Silang Optimum Hidrogel Kitosan

Pada penelitian ini, reaksi ikat silang hidrogel dilakukan dengan pengadukan secara terus menerus larutan kitosan yang telah ditambahkan agen pengikat silang dengan menggunakan *stirring hotplate* selama waktu reaksi yang telah ditentukan, yaitu 30 menit, 60 menit, dan 120 menit, pada suhu ruang. Hal ini dilakukan untuk mengetahui waktu reaksi optimum yang dibutuhkan untuk menghasilkan hidrogel terikat silang dengan baik. Sehingga diharapkan hidrogel kitosan yang terbentuk tidak rapuh dan memiliki sifat mekanik yang baik.

Sebagai tahap awal, kitosan dilarutkan dalam larutan asam asetat 1% dengan pengadukan secara terus menerus pada suhu ruang untuk menghasilkan larutan kitosan. Serbuk kitosan larut sempurna dalam larutan asam asetat 1% setelah pengadukan berlangsung selama satu jam (Abdel-Mohsen, A. M, *et al.* 2011). Kitosan dilarutkan dalam asam membentuk larutan homogen, yang kemudian digunakan untuk membentuk hidrogel (Chengjun Zhou, *et al.* 2011). Larutan kitosan yang diperoleh berupa larutan

kuning pucat yang sedikit kental. Berikut ini, Gambar 4.1.1 merupakan Gambar larutan kitosan dari hasil reaksi.



**Gambar 4.1.1 Larutan Kitosan 2% (w/v)**

Untuk membentuk hidrogel kitosan terikat silang, dilakukan reaksi ikat silang antara larutan kitosan yang telah diperoleh dengan jenis agen pengikat silang dan komposisi agen pengikat silang yang berbeda. Reaksi ikat silang ini dilakukan dengan pengadukan secara terus menerus pada suhu ruang. Pada Tabel 4.1 terdapat deskripsi variasi jenis dan komposisi agen pengikat silang serta waktu reaksi ikat silang yang digunakan.

**Tabel 4.1 Deskripsi Variasi Jenis dan Komposisi Agen Pengikat Silang serta Waktu Reaksi Ikat Silang.**

<b>JenisAgen Pengikatsilang</b>	<b>Volume (ml) Agen Pengikatsilang</b>	<b>Waktu Reaksi Ikatsilang (menit)</b>
Formaldehid 0,1M	Divariasikan 1mL, 1,5mL dan 2mL	Divariasikan 30min, 60min dan 120min
Asetaldehid 0,1M		
Glutaraldehid 0,1M		

Lamanya pengadukan reaksi ikat silang divariasikan selama 30 menit, 60 menit dan 120 menit sehingga membentuk larutan hidrogel yang kekentalannya meningkat dari larutan kitosan yang belum terikat silang. Larutan kental yang dihasilkan, ditempatkan dalam suatu wadah pencetak

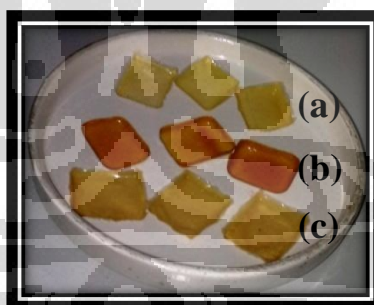


film seperti pada Gambar 4.1.2 di bawah ini. Kitosan dalam bentuk film memiliki *barrier* yang baik dan juga sifat mekanik yang baik (Suyatma , Nugraha Edhi, *et al.* 2011).



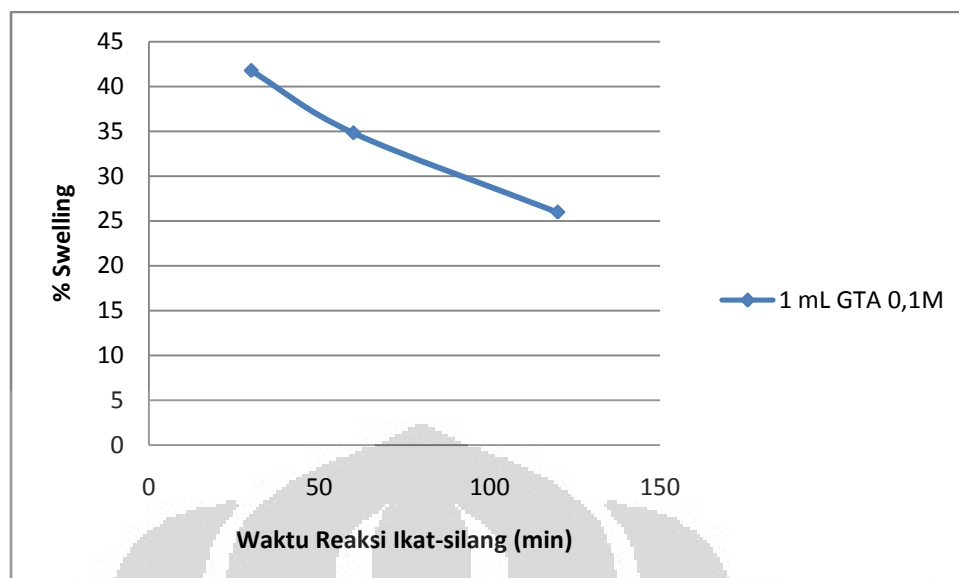
**Gambar 4.1.2 Larutan Hidrogel Kitosan Terikat Silang dengan (a) Formaldehid 0,1M (b) Glutaraldehid 0,1M dan (c) Asetaldehid 0,1M Dalam Wadah Pencetak Film Hidrogel**

Kemudian larutan hidrogel tersebut dikeringkan semalaman pada suhu ruang dan dikeringkan lebih lanjut dengan oven pada suhu 60°C untuk menyempurnakan proses pengeringan dan menghilangkan sisa-sisa pelarut (Rohindra, David R, *et al.* 2004). Gambar 4.1.3 memperlihatkan film hidrogel kitosan kering.



**Gambar 4.1.3 Film Hidrogel Kitosan Kering Terikat Silang dengan (a) Formaldehid 0,1M (b) Glutaraldehid 0,1M (c) Asetaldehid 0,1M**

Untuk membuktikan hidrogel kitosan sudah terikat silang dengan baik atau belum, dilakukan pengujian *swelling* dengan merendam hidrogel terikat silang yang telah dihasilkan ke dalam larutan aquades sebagai medium cairnya selama 30 menit pada suhu ruang (Lampiran 2). Berikut ini (Gambar 4.1.4) adalah kurva hasil pengujian persen rasio *swelling* hidrogel kitosan terikat silang pada waktu reaksi yang berbeda.



**Gambar 4.1.4. Kurva Persen Rasio *Swelling* Hidrogel Kitosan Terikatsilang Dengan Waktu Reaksi Ikat Silang Bervariasi**

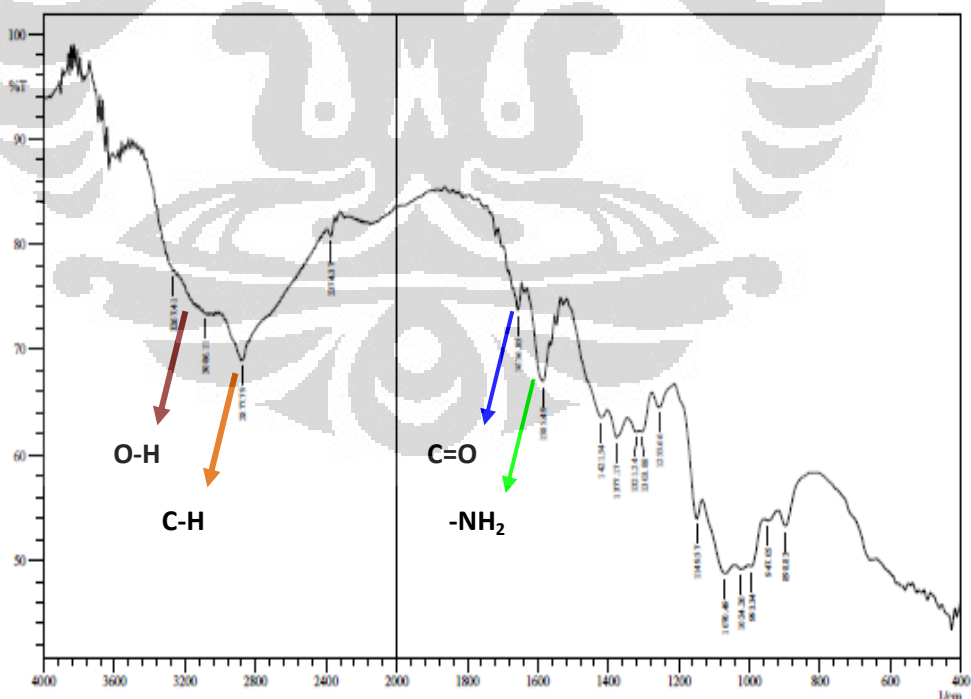
Pada Gambar 4.1.4. persen rasio *swelling* hidrogel kitosan terikat silang semakin menurun seiring bertambahnya waktu reaksi ikat silang yang dilakukan. Menurut (Rohindra, David R., *et al.* 2004) pada penelitian sebelumnya, reaksi ikat silang suatu hidrogel akan menghasilkan struktur yang lebih padat dan rapat sehingga strukturnya tidak mudah rapuh dan sifat mekaniknya menjadi lebih baik. Semakin lama waktu reaksi ikat silang yang dilakukan, kemungkinan semakin tinggi ikat silang yang terbentuk antara gugus amina pada kitosan dengan gugus karbonil pada agen pengikat silang yang digunakan membentuk stuktur jaringan yang lebih kuat dan rapat. Disamping sifat mekaniknya yang menjadi lebih baik, namun strukturnya yang menjadi kuat dan rapat dapat menurunkan daya absorb atau kemampuan mengembang (*swelling*) hidrogel (Abdel-Mohsen, A.M, *et al.* 2011).

Pada Gambar 4.1.4, persen rasio *swelling* hidrogel kitosan paling rendah terjadi pada waktu reaksi reaksi ikat silang selama 120 menit. Rendahnya nilai rasio *swelling* tersebut menandakan bahwa setelah lamanya reaksi ikat silang 120 menit, hidrogel kitosan telah terikat silang baik dengan senyawa agen pengikat silang. Dengan demikian, dapat disimpulkan hidrogel kitosan telah terikat silang dengan baik setelah reaksi ikat silang selama 120

menit dan diharapkan hidrogel kitosan yang dihasilkan tidak rapuh dan memiliki sifat mekanik yang baik. Sehingga digunakan waktu reaksi ikat silang selama 120 menit untuk perlakuan berikutnya.

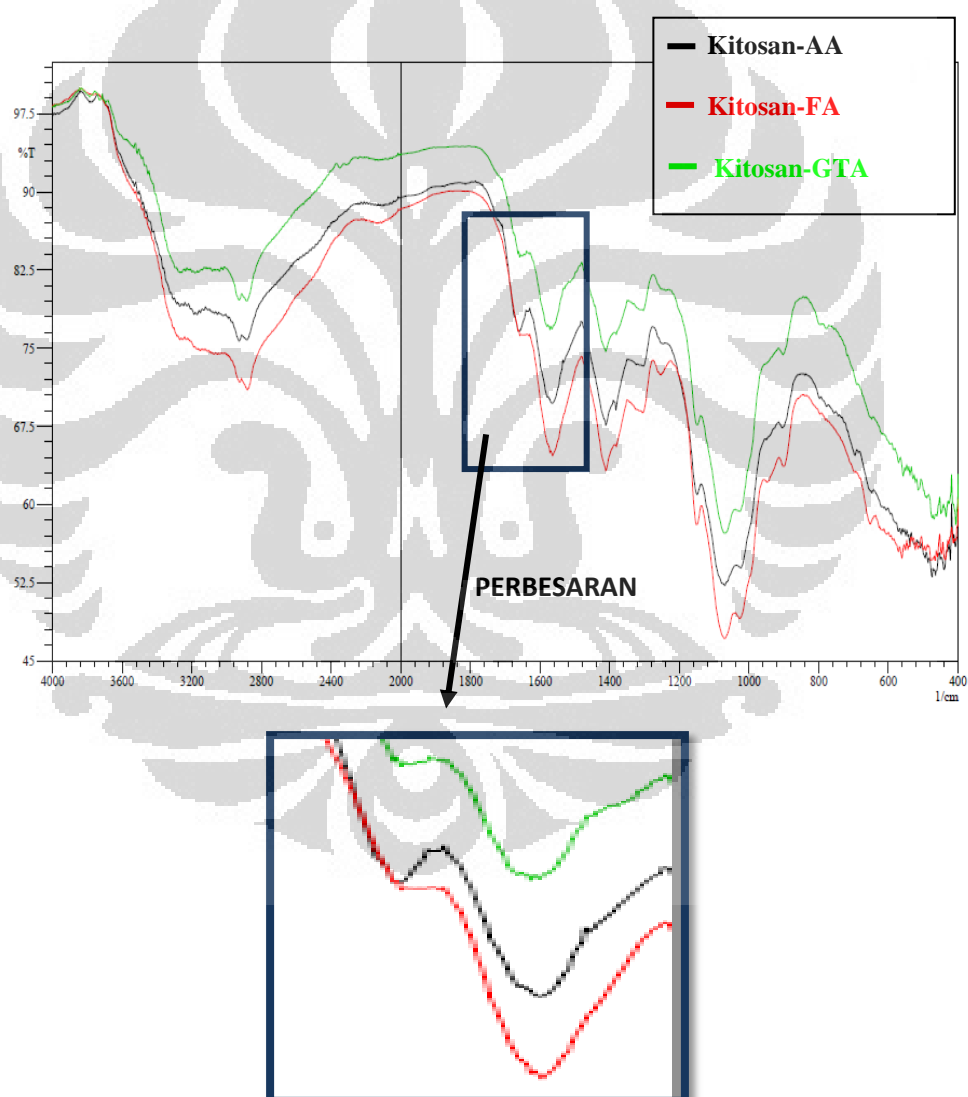
#### 4.2 Pengaruh Jenis dan Komposisi Agen Pengikat Silang Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang

Seperti yang telah dijelaskan pada subbab sebelumnya, untuk membentuk hidrogel kitosan terikat silang dilakukan dengan reaksi ikat silang antara larutan kitosan yang telah diperoleh dengan jenis agen pengikat silang dan komposisi agen pengikat silang yang berbeda. Senyawa agen pengikat silang yang digunakan adalah formaldehid (FA), asetaldehid (AA) dan glutaraldehid (GTA) dengan komposisi masing-masing 1mL, 1,5mL dan 2mL. Reaksi ikat silang dilakukan selama 120 menit dimana hidrogel kitosan telah terikat silang dengan baik. Film hidrogel kitosan yang telah terikat silang diuji dengan FTIR (Lampiran 7-10). Gambar 4.2.1 berikut ini menggambarkan hasil spektrum FTIR serbuk kitosan yang digunakan.



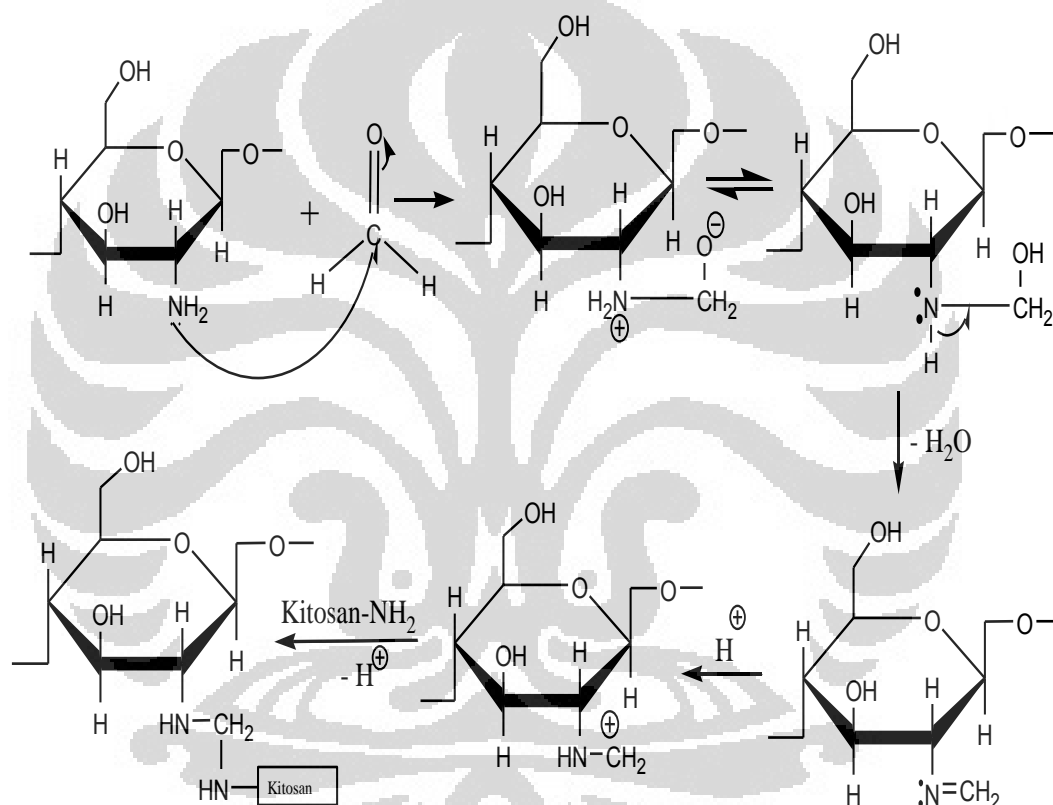
Gambar 4.2.1 Spektra FTIR Serbuk Kitosan

Dari hasil spektrum FT-IR serbuk kitosan yang didapatkan, terlihat puncak khas kitosan terletak pada daerah  $3500-3000\text{ cm}^{-1}$  melebar untuk gugus hidroksil (OH) dan  $1592-1550\text{ cm}^{-1}$  untuk gugus amina (Qu *et al.* 2000). Serta terdapat sebuah puncak pada  $1656\text{ cm}^{-1}$  disebabkan oleh getaran regangan karbonil sisa dari gugus asetamida pada kitin (Qu *et al.* 2000). Pada Gambar 4.2.2 dibawah ini, merupakan spektrum FTIR hidrogel kitosan yang terikat silang dengan agen pengikat silang berbeda. Dari hasil yang diperoleh, spektrum dari ketiga hidrogel kitosan terikat silang terlihat mirip dengan spektrum serbuk kitosan murni pada Gambar 4.2.1.



**Gambar 4.2.2 Spektra FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang**

Dari hasil spektrum FTIR pada Gambar 4.2.2, terlihat puncak 1560-1580  $\text{cm}^{-1}$  yang merupakan serapan puncak khas gugus amina terlihat semakin berkurang mulai dari puncak serapan hidrogel kitosan terikat silang formaldehid (FA), hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid (AA) hingga puncak serapan hidrogel kitosan terikat silang dengan glutaraldehid (GTA) yang paling rendah. Puncak-puncak yang khas tersebut memperkuat terbentuknya *base Schiff* setelah reaksi ikat silang dengan kitosan (Singh, A, *et al.* 2005) yang digambarkan sebagai berikut (Gambar 4.2.3).



[Sumber : A Singh, S S Narvi, P K Dutta dan N D Pandey. (2005). External stimuli response on a novel chitosan hydrogel crosslinked with formaldehyde. *Bull. Mater. Sci.*, 29, 233–238]

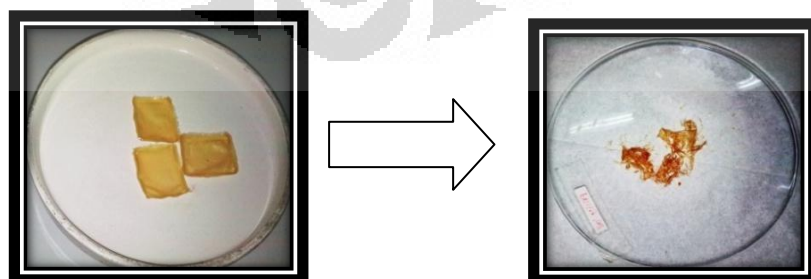
**Gambar 4.2.3 Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan Dengan Formaldehid**

Selain itu, dari hasil penelitian sebelumnya (Mointero dan Airoidi, 1999) dikatakan bahwa interaksi molekuler antara kitosan dan glutaraldehid (agen pengikat silang yang digunakan) diperlihatkan pada gugus amina kitosan yang terikat silang dengan glutaraldehid. Dengan demikian, terikat

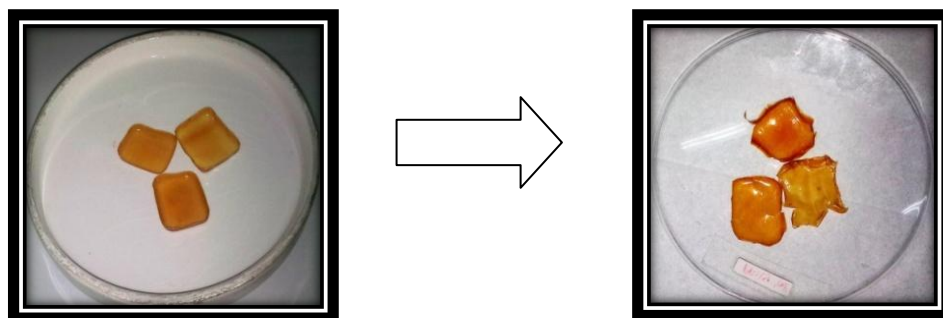
silangnya hidrogel kitosan terjadi pada gugus amina kitosan dengan c-karbonil pada senyawa agen pengikat silang yang digunakan. Semakin banyak gugus amina kitosan yang terikat silang, maka semakin berkurang amina yang ditransmisikan. Dengan melihat spektrum FTIR ketiga hidrogel kitosan terikat silang (Gambar 4.2.2) yang dihasilkan, dapat disimpulkan bahwa hidrogel kitosan lebih terikat silang dengan glutaraldehid > asetaldehid > formaldehid. Untuk pembuktian lebih lanjut dan untuk mengetahui seberapa kuat terikat-silangnya hidrogel kitosan yang dihasilkan, dilakukan pengujian derajat ikat silang (*degree of crosslinking*) dengan merendam film hidrogel kitosan yang telah diketahui berat keringnya ke dalam pelarutnya, yaitu larutan asam asetat 1% (v/v), selama 24 jam pada suhu ruang. Kemudian film tersebut dikeringkan dengan menggunakan oven untuk menguapkan sisa-sisa pelarutnya dan berat kering setelah perlakuan pun ditentukan dengan penimbangan berat. Pada Gambar 4.2.4 berikut merupakan Gambar penampakan fisik hidrogel kitosan yang telah terikat silang sebelum dan sesudah perlakuan uji derajat ikat silang.



a. Film Hidrogel Kitosan Terikat Silang Formaldehid 0,1M



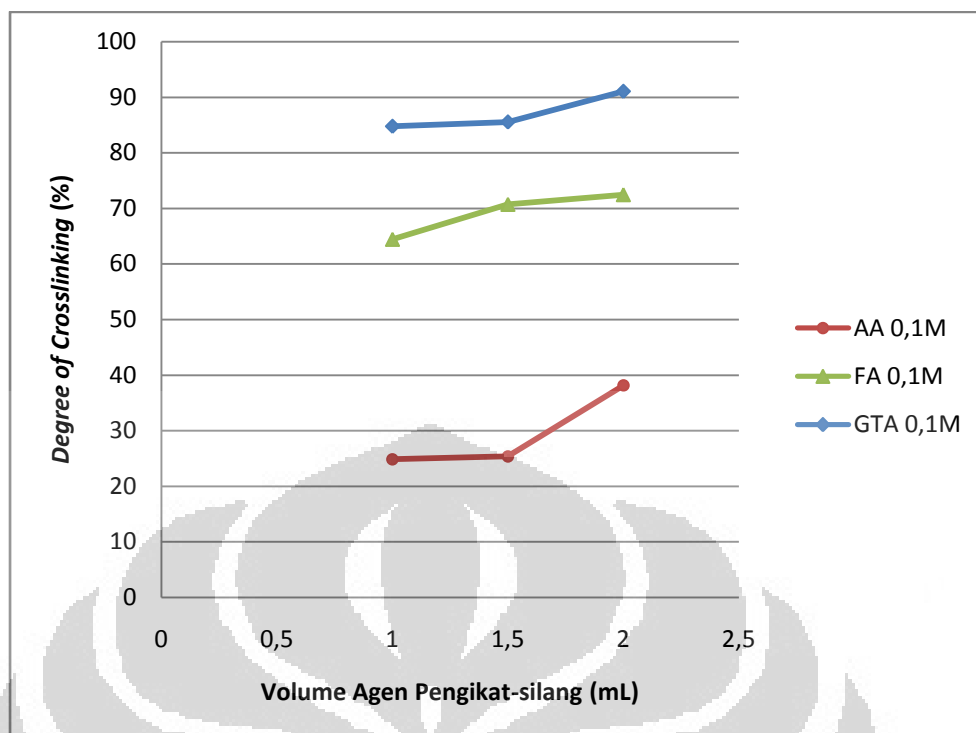
b. Film Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid 0,1M



c. Film Hidrogel Kitosan Terikat Silang Glutaraldehyd 0,1M

#### Gambar 4.2.4 Memperlihatkan Penampakan Fisik Uji Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan

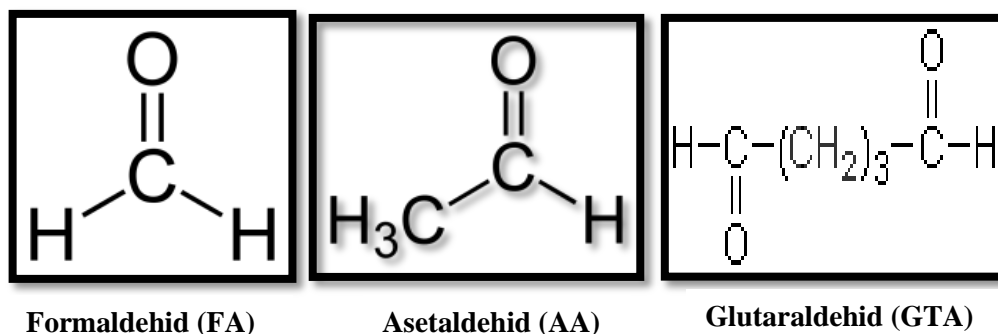
Dari hasil Gambar tersebut, terlihat film hidrogel kitosan terikat silang dengan asetaldehyd (Gambar 4.2.4.b) hancur setelah perendaman 24 jam dalam pelarutnya. Begitu juga pada film hidrogel kitosan terikat silang dengan formaldehyd (Gambar 4.2.4.a) yang sedikit hancur. Berbeda dengan film hidrogel kitosan terikat silang dengan glutaraldehyd (Gambar 4.2.4.c) yang penampakan fisiknya mirip dengan penampakan fisiknya sebelum perendaman 24 jam dalam pelarutnya. Selanjutnya ditentukan persen derajat ikat silang dari ketiga film hidrogel kitosan terikat silang tersebut (Lampiran 3). Persen derajat ikat silang merupakan salah satu parameter yang umumnya digunakan dalam pengujian kekuatan terikat silang pada jaringan polimer hidrogel (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010). Persen derajat ikat silang yang diperoleh terdapat pada Gambar 4.2.5 berikut ini.



**Gambar 4.2.5** Persen Derajat Ikat Silang Film Hidrogel Kitosan Terikat Silang dengan Jenis dan Volume Agen Pengikat Silang Bervariasi

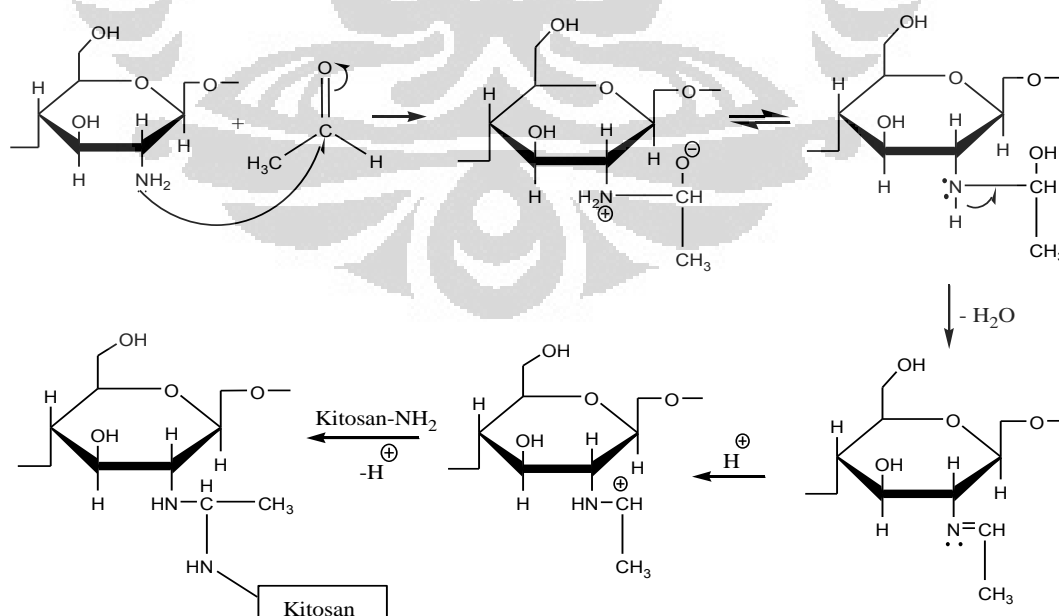
Dari kurva derajat ikat silang yang di peroleh pada Gambar 4.2.5, derajat ikat silang film hidrogel kitosan meningkat seiring dengan penambahan komposisi/volume agen pengikat silang. Seperti yang terlihat pada hidrogel kitosan terikat silang dengan glutaraldehyd (GTA) yang memiliki persen derajat ikat silang paling tinggi, yaitu hingga mencapai 91%. Kemudian derajat ikat silang film hidrogel kitosan terikat silang dengan formaldehyd (FA), yaitu sebesar 72,5% dan derajat ikat silang film hidrogel kitosan terikat silang dengan asetaldehyd (AA) yang jauh lebih rendah, yaitu hanya sebesar 38%. Peristiwa ini dapat terjadi karena perbedaan struktur dari agen pengikat silang yang digunakan dalam pembuatan film hidrogel kitosan, yaitu formaldehyd (FA), asetaldehyd (AA), dan glutaraldehyd (GTA), yang struktur ketiganya digambarkan pada Gambar 4.2.6 di bawah ini.



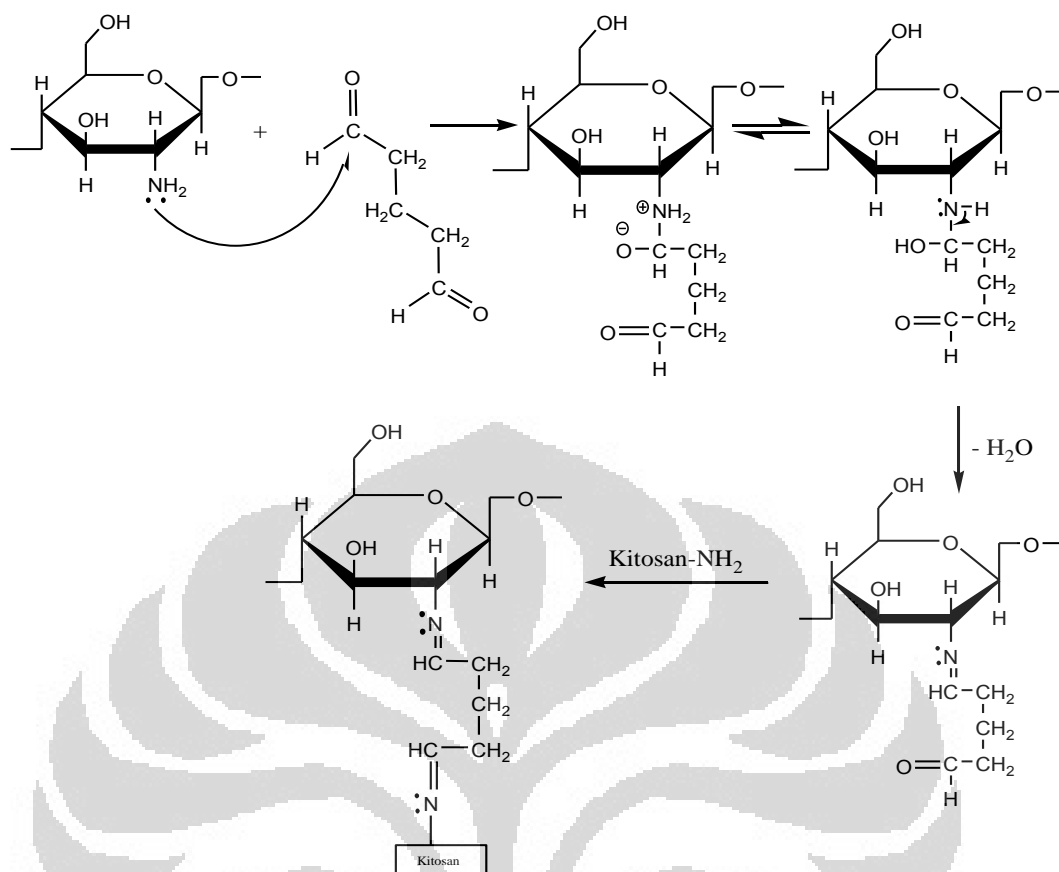


**Gambar 4.2.6. Struktur Formaldehid, Asetaldehid dan Glutaraldehid**

Dari ketiga agen pengikat silang tersebut, glutaraldehid memiliki dua gugus fungsi karbonil (C=O) yang disukai oleh gugus amina pada kitosan untuk membentuk ikat silang. Berbeda dengan agen pengikat silang formaldehid (lihat pula Gambar 4.2.3 mekanisme reaksi ikat silang kitosan dengan formaldehid) dan asetaldehid yang hanya memiliki satu gugus fungsi karbonil (C=O). Dengan demikian, reaksi pembentukan ikat silang antara hidrogel kitosan dan agen pengikat silang glutaraldehid berlangsung lebih cepat sehingga struktur yang dihasilkan menjadi lebih rapat dan rigid dibandingkan dengan hidrogel kitosan yang terikat silang dengan formaldehid dan asetaldehid. Berikut ini (Gambar 4.2.7) merupakan mekanisme reaksi ikat silang kitosan dengan (a) asetaldehid dan (b) glutaraldehid.



**(a) Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan dengan Asetaldehid**



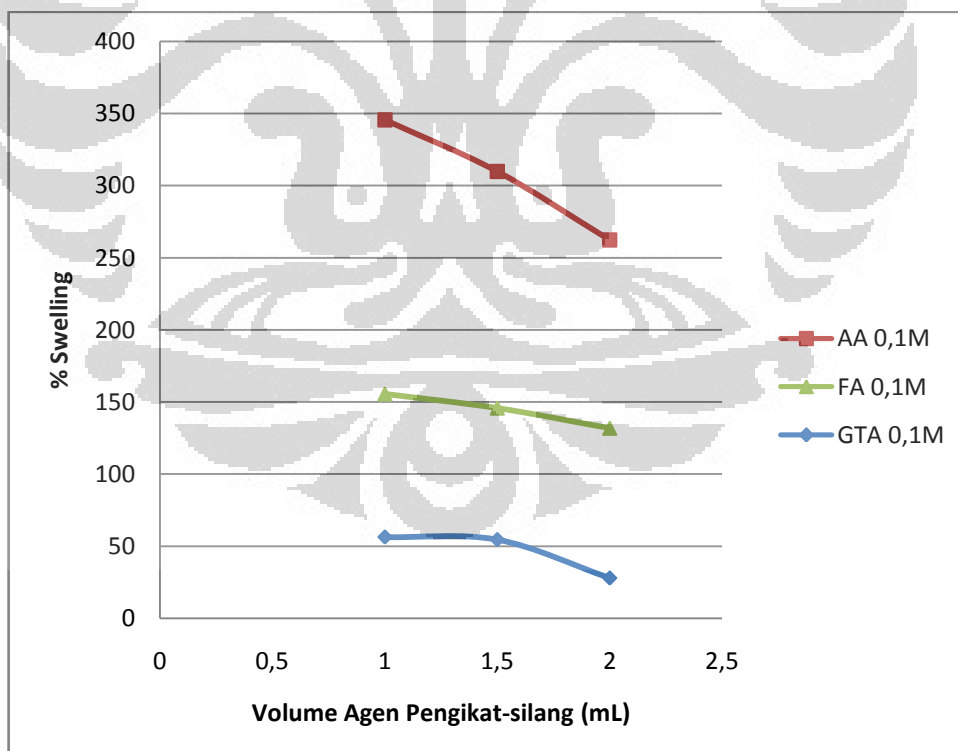
[Sumber struktur kitosan terikat silang glutaraldehid: Vieira, Rodrigo.S., *et al.* 2006 ; Baroni, P., *et al.* 2008]

(b) Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan dengan Glutaraldehid

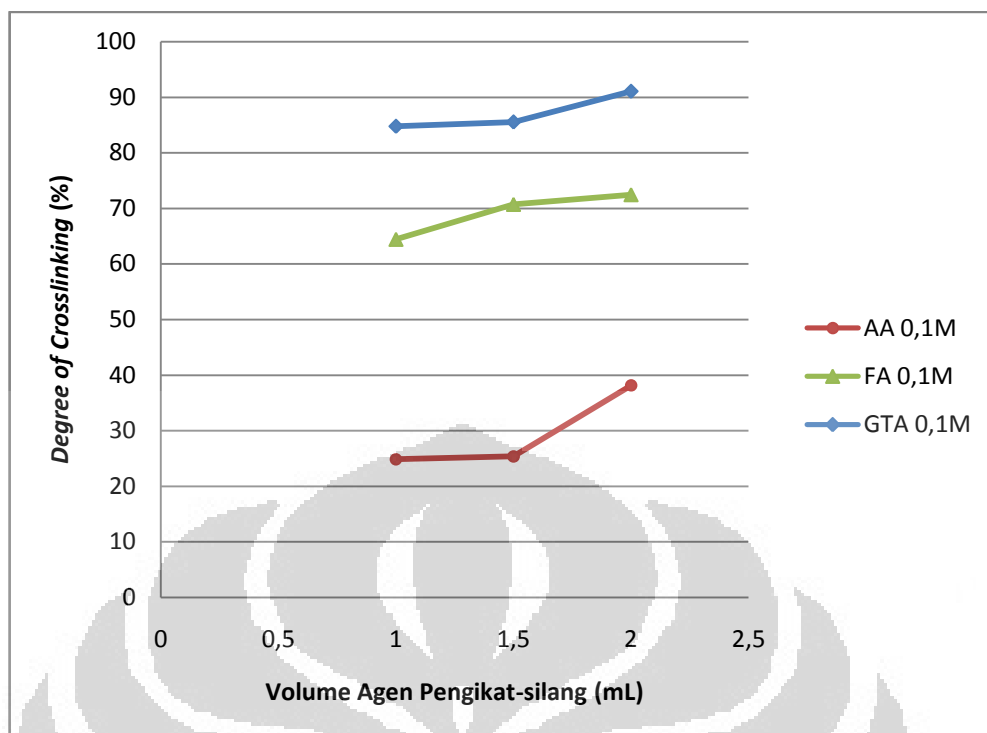
### Gambar 4.2.7 Mekanisme Reaksi Ikat Silang Kitosan

Dengan membandingkan besarnya persentase derajat ikat silang (Gambar 4.2.5) dengan hasil penampakan fisik film hidrogel kitosan terikat silang sebelum dan sesudah perendaman 24 jam dalam pelarutnya (Gambar 4.2.6). Dapat disimpulkan bahwa hidrogel kitosan yang belum terikat silang akan larut dalam pelarutnya seperti fenomena yang terjadi pada film hidrogel kitosan terikat silang dengan asetaldehid (AA) yang memiliki derajat ikat silang paling rendah, setelah perendaman 24 jam dalam pelarutnya, penampakan fisik film hidrogel tersebut nampak hancur (Gambar 4.2.6b). Berbeda dengan film hidrogel kitosan terikat silang dengan glutaraldehid (GTA) yang memiliki derajat ikat silang paling tinggi, setelah perendaman 24 jam dalam pelarutnya, penampakan fisik film hidrogel tersebut masih terlihat sama seperti semula (Gambar 4.2.6c).

Besar-kecilnya persen derajat ikat silang ini sangat berpengaruh pada kemampuan absorpsi suatu hidrogel terikat silang yang dapat ditentukan dengan persen rasio *swelling* (mengembang) suatu hidrogel (Lampiran 4). Rasio *Swelling* merupakan rasio perbandingan bobot hidrogel dalam keadaan menyerap air (*swelling*) terhadap bobot keringnya yang merupakan salah satu parameter utama dari hidrogel khususnya untuk pengujian suatu superabsorben (Erizal., & Redja, I Wayan. 2010). Pada Gambar 4.2.8, terdapat hubungan antara persen rasio *swelling* dan persen derajat ikat silang hidrogel kitosan dengan jumlah agen pengikat silang yang berbeda, dimana hubungan keduanya berbanding terbalik. Untuk Gambar 4.2.8 (a), persen rasio *swelling* semua hidrogel kitosan terikat silang menurun seiring dengan meningkatnya jumlah agen pengikat silang yang digunakan. Sedangkan untuk Gambar 4.2.8 (b), persen derajat ikat silang semua hidrogel kitosan terikat silang meningkat seiring dengan meningkatnya jumlah agen pengikat silang yang digunakan.



(a) Persen Rasio *Swelling*



(b) Persen Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan

**Gambar 4.2.8 Hubungan Antara Persen Rasio *Swelling* dengan Persen Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan**

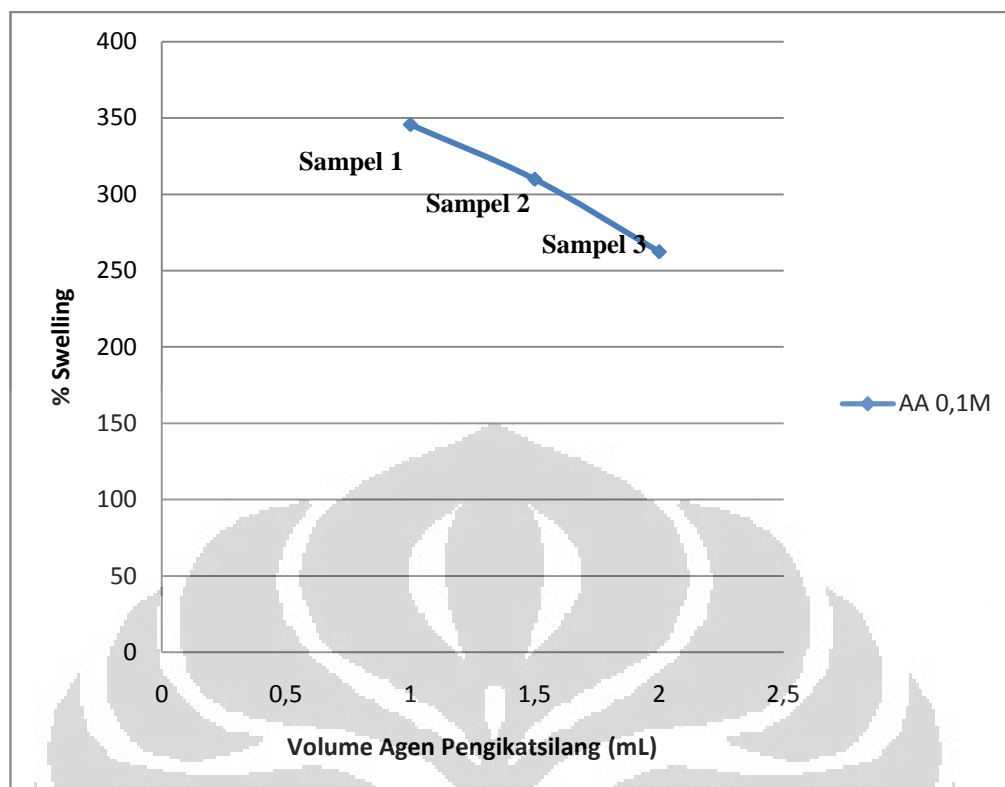
Selain itu, apabila diperhatikan Gambar 4.2.8 keseluruhan dapat dilihat pula bahwa hidrogel kitosan yang terikat silang dengan asetaldehid 0,1M (AA) memiliki persen rasio *swelling* paling besar dan memiliki persen derajat ikat silang paling rendah. Sebaliknya terjadi pada hidrogel kitosan yang terikatsilang dengan glutaraldehid 0,1M (GTA) yang memiliki persen rasio *swelling* paling rendah dan memiliki derajat ikat silang yang paling tinggi.

Hasil yang didapat ini sesuai dengan hasil penelitian sebelumnya pada literatur (Wu *et al.* 2001 ; Lin-Gibson *et al.*2003), semakin banyak agen pengikat silang yang digunakan, derajat ikat silang hidrogel akan semakin besar, menyebabkan berkurangnya volume air yang terperangkap di dalam jaringan polimer hidrogel. Dengan demikian, dapat diketahui bahwa daya absorpsi dan kemampuan meregang (*swelling*) hidrogel kitosan terikat silang

sangat bergantung pada ketersediaan gugus fungsi hidrofilik dan persentase derajat ikat silang suatu hidrogel (Chengjun Zhou, *et al.* 2011).

Selain itu, efisiensi kekuatan dan terperangkapnya air dalam jaringan polimer hidrogel sangat dipengaruhi oleh jumlah agen pengikat silang yang ditambahkan. Struktur linear kitosan dapat dirubah menjadi struktur jaringan melalui reaksi ikat silang dan molekul medium cair dapat terperangkap didalam strukturnya (Singh, A, *et al.* 2005). Seperti yang terlihat pada Gambar 4.2.9, persen rasio *swelling* sampel 1 sangat tinggi. Hal ini disebabkan oleh rendahnya jumlah agen pengikat silang yang ditambahkan, kekuatan terikat silang hidrogel juga rendah sehingga strukturnya dapat melakukan peregangan dengan mudah ketika mengembang (*swollen*) dalam medium cairnya yang menunjukkan hidrogel mampu mengabsorb medium cairnya hingga ratusan kali berat keringnya. Namun, rendahnya kekuatan ikat silang pada hidrogel dapat memungkinkan suatu saat hidrogel dapat hancur dan larut dalam mediumnya (Hoffman 2002). Kondisi ini sangat sesuai untuk aplikasi hidrogel kitosan sebagai super adsorben yang biodegradabel.

Sedangkan pada sampel 3 (Gambar 4.2.9), persen rasio *swelling* hidrogel menurun drastis. Hal ini menjelaskan semakin banyak jumlah agen pengikat silang yang digunakan, hidrogel semakin kuat terikat silang, menyebabkan berkurangnya volume medium cair yang terperangkap di dalam jaringan polimer hidrogel. Hasil yang sama telah dilaporkan dalam literatur (Wu *et al* 2001; Lin-Gibson *et al* 2003).



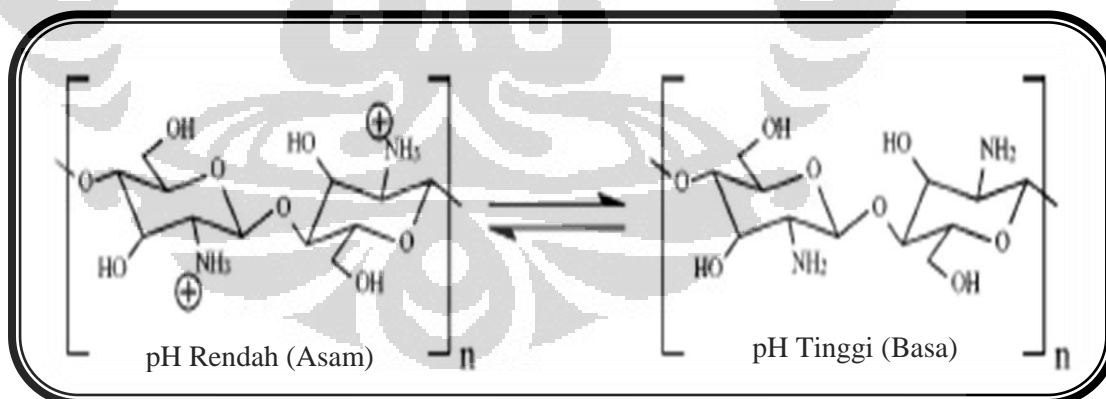
**Gambar 4.2.9** Persen Rasio *Swelling* Hidrogel Kitosan dengan Variasi Jumlah Agen Pengikatsilang (mL)

Dengan melihat daya absorpsi hidrogel kitosan terikat silang yang diperoleh, dapat disimpulkan bahwa hidrogel kitosan terikat silang dengan 1ml asetaldehid memiliki daya absorpsi yang paling baik. Hal ini ditunjukkan dengan persen rasio *swelling* (kemampuan mengembangnya) yang mencapai 350%. Sedangkan hidrogel kitosan terikat silang dengan 1ml formaldehid memiliki persen rasio *swelling* 150% dan dengan 1ml glutaraldehid persen rasio *swelling* yang diperoleh hanya sebesar 50%. (Gambar 4.2.8.a)

#### **4.3 Pengaruh pH Medium *Swelling* Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang**

*Swelling* merupakan suatu fenomena air atau cairan biologis yang terperangkap dalam jaringan polimer hidrogel sehingga bentuk fisiknya menjadi menggembung/mengembang. Kemampuan mengembangnya

hidrogel ini bergantung pada karakteristik struktur kimia dan mediumnya (Singh, A, *et al.* 2005). Untuk mengetahui pengaruh pH medium pada kemampuan *swelling* hidrogel, film hidrogel kitosan direndam dalam larutan pH 4, 7, dan 10 pada temperatur ruang selama 30 menit (Lampiran 5). Pada Gambar 4.3.1 memperlihatkan pengaruh pH terhadap *swelling* hidrogel kitosan. Secara keseluruhan *swelling* hidrogel maksimal pada pH medium asam dan menurun seiring dengan bertambahnya nilai pH. Hal ini dapat disebabkan oleh tingginya konsentrasi  $H^+$  pada kondisi pH rendah akan meningkatkan proses protonasi gugus amina pada kitosan membentuk gugus  $-NH_3^+$ , sehingga menyebabkan tolakan dalam rantai polimer hidrogel sehingga terjadi relaksasi/peregangan pada rantai polimer. Dan seiring dengan meningkatnya pH, gugus amina telah terdeprotonasi menyebabkan tolakan yang terjadi dalam struktur jaringan polimer hidrogel berkurang, strukturnya pun menjadi rigid dan rapat kembali sehingga daya adsorbnya berkurang (Rohindra, David R, *et al.* 2004; Chengjun Zhou, *et al.* 2011; Wan Ngah, W.S, *et al.* 2008; Wang, Shu-Guang, *et al.* 2008). Menurut Hyunmin Yi dkk (2005), proses reaksi peristiwa ini dapat digambarkan seperti pada Gambar 4.3.1 berikut :



[Sumber : Hyunmin Yi, *et al.* 2005. *Biofabrication with chitosan.*

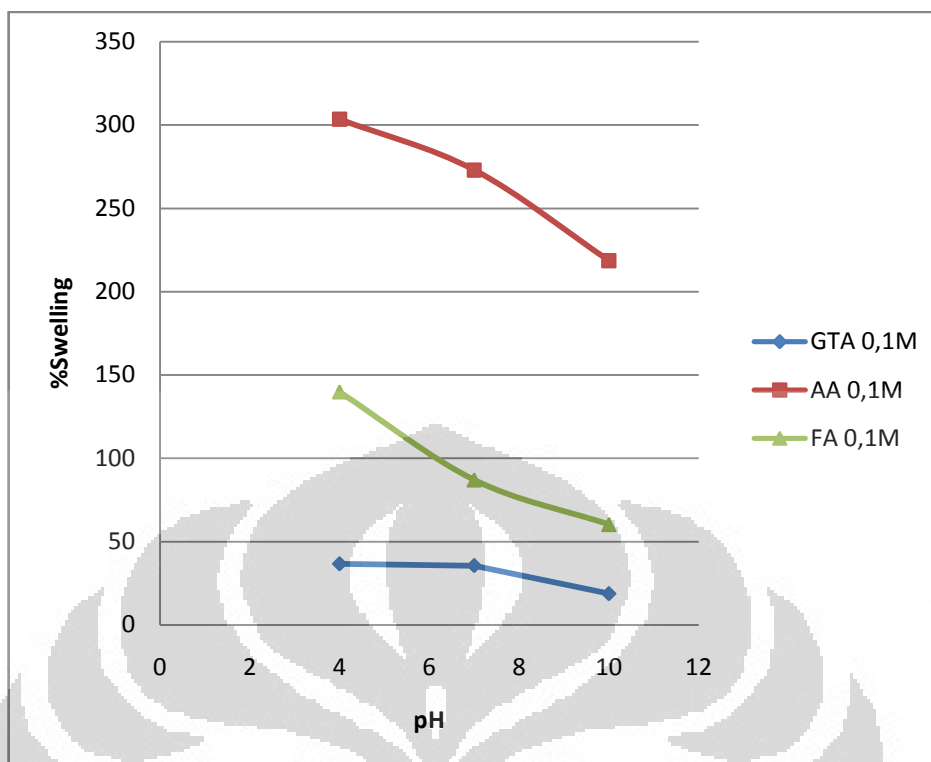
*Biomacromolecules*, vol.6; no.6]

**Gambar 4.3.1 Proses Protonasi Dan Deprotonasi Gugus Amina Pada Kitosan**

Dari hasil yang diperoleh (Gambar 4.3.2), hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid (AA) yang telah dijelaskan sebelumnya bahwa hidrogel ini memiliki derajat ikat silang yang rendah, sehingga sejumlah besar gugus amina yang tidak bereaksi menyebabkan persen rasio *swelling* hidrogel kitosan jauh lebih besar (Singh, A, *et al.* 2005) dibandingkan dengan persen rasio *swelling* hidrogel kitosan yang terikat silang dengan formaldehid (FA) dan juga yang terikat silang dengan glutaraldehid (GTA). Sebaliknya, hidrogel kitosan terikat silang dengan glutaraldehid (GTA) yang memiliki derajat ikat silang paling tinggi, jumlah gugus amina yang terionisasi sangat sedikit sehingga persen rasio *swelling* pada pH asam paling rendah. Dengan demikian, bukan hanya pengaruh dari seberapa besarnya jumlah gugus amina yang terionisasi dalam suatu hidrogel terikat silang yang mempengaruhi persen rasio *swelling*-nya. Namun, nilai dari derajat ikat silang juga merupakan suatu parameter yang penting untuk besarnya nilai rasio *swelling* pada pH medium yang berbeda (Singh, A, *et al.* 2005).

Hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid, selain memiliki daya absorb yang tinggi juga memiliki sensitivitas yang cukup baik terhadap pH mediumnya. Terlihat pada Gambar 4.3.2, hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid mengalami penurunan daya absorb yang signifikan seiring dengan bertambahnya nilai pH. Berbeda dengan hidrogel kitosan terikat silang formaldehid dan glutaraldehid yang kemampuan daya absorbnnya tidak berbeda dengan signifikan terhadap perubahan nilai pH mediumnya.



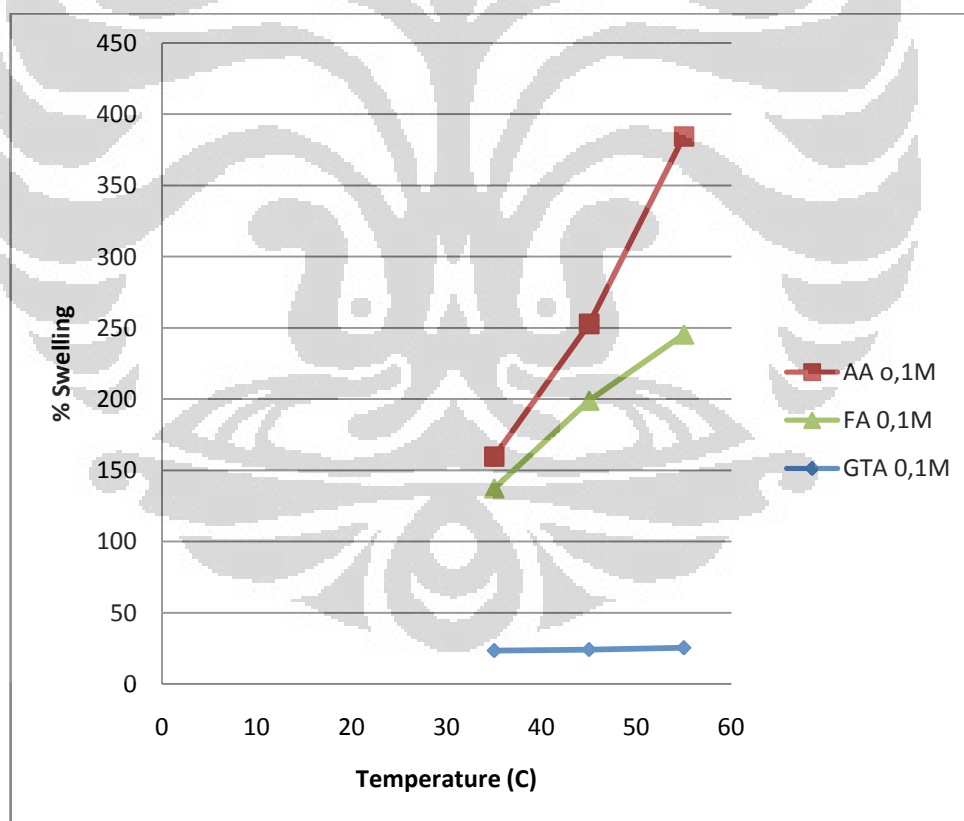


**Gambar 4.3.2 Pengaruh pH Medium Terhadap Persen Rasio Swelling Hidrogel Kitosan**

#### 4.4 Pengaruh Suhu Medium *Swelling* Terhadap Kemampuan Absorpsi Hidrogel Kitosan Terikat Silang

Untuk mengetahui pengaruh suhu medium terhadap daya absorb yang ditunjukkan dengan kemampuan mengembang (*swelling*) suatu hidrogel kitosan terikat silang, film hidrogel kitosan terikat silang direndam dalam larutan aquades pada suhu medium 35<sup>0</sup>C, 45<sup>0</sup>C dan 55<sup>0</sup>C masing-masing selama 30 menit (Lampiran 6). Gambar 4.4 memperlihatkan pengaruh suhu medium terhadap persen rasio *swelling* hidrogel kitosan. Seiring meningkatnya suhu medium cairnya, persen rasio *swelling* hidrogel kitosan pun meningkat. Semua hidrogel terikat silang memperlihatkan peningkatan persen rasio *swelling* karena asosiasi/dissosiasi ikatan hidrogen oleh gugus amina kitosan dalam hidrogel. Dissosiasi ikatan hidrogen antara gugus amina kitosan dengan molekul air bebas dapat terjadi di dalam jaringan hidrogel,

sehingga menyebabkan relaksasi/peregangan rantai polimer hidrogel dimana peregangan ini tetap dibatasi oleh jumlah dan jenis agen pengikatsilangnya (Singh, A, *et al.* 2005). Seperti yang terlihat pada Gambar 4.4, peningkatan persen rasio *swelling* hidrogel kitosan terikat silang glutaraldehid (GTA) yang tidak signifikan, diikuti oleh persen rasio *swelling* hidrogel kitosan terikat silang formaldehid dan persen rasio *swelling* hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid yang sangat signifikan. Peristiwa ini dipengaruhi oleh besarnya nilai derajat ikat silang hidrogel kitosan tersebut. Semakin tingginya derajat ikat silang hidrogel kitosan yang terikat silang, disosiasi ikatan hidrogel yang terjadi dalam jaringan hidrogel semakin rendah, sehingga relaksasi / peregangan rantai polimer yang terjadi juga semakin rendah. Dengan demikian, hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid memiliki daya absorb dan sifat sensitivitas yang sangat baik terhadap peningkatan suhu mediumnya.



**Gambar 4.4 Pengaruh Suhu Medium Terhadap Persen Rasio Swelling Hidrogel Kitosan**

## BAB 5

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1 Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, terdapat beberapa hal yang dapat disimpulkan, yaitu :

1. Polimer superabsorben dari hidrogel kitosan terikat silang dapat disintesis dengan reaksi ikat silang antara larutan kitosan dengan agen pengikat silang.
2. Waktu reaksi ikat silang optimum untuk menghasilkan hidrogel kitosan terikat silang dengan baik adalah selama 120 menit pengadukan pada suhu ruang.
3. Hidrogel kitosan terikat silang dengan 1mL asetaldehid memiliki daya absorb yang paling baik dengan persen rasio *swelling* (kemampuan mengembangnya) yang mencapai 350%.
4. Hidrogel kitosan terikat silang dengan asetaldehid, selain memiliki daya absorb yang tinggi juga memiliki sensitivitas yang cukup baik terhadap pH dan suhu mediumnya.

#### 5.2 Saran

Berikut ini beberapa saran yang dapat dijadikan acuan untuk pengembangan peneltian ini selanjutnya, yaitu :

1. Setelah diketahui kemampuan absorpsi polimer superabsorben dari hidrogel kitosan terikat silang, selanjutnya dapat dilakukan pengujian sifat mekanik, ketahanan kimia, dan sifat biodegradabilitas polimer superabsorben dari hidrogel kitosan ini.
2. Hidrogel kitosan terikat silang asetaldehid telah diketahui memiliki daya absorb hingga 350% *swelling*-nya, hal ini memungkinkan untuk diaplikasikan sebagai diaper, sistem pengantar obat, dan lain sebagainya.

## DAFTAR PUSTAKA

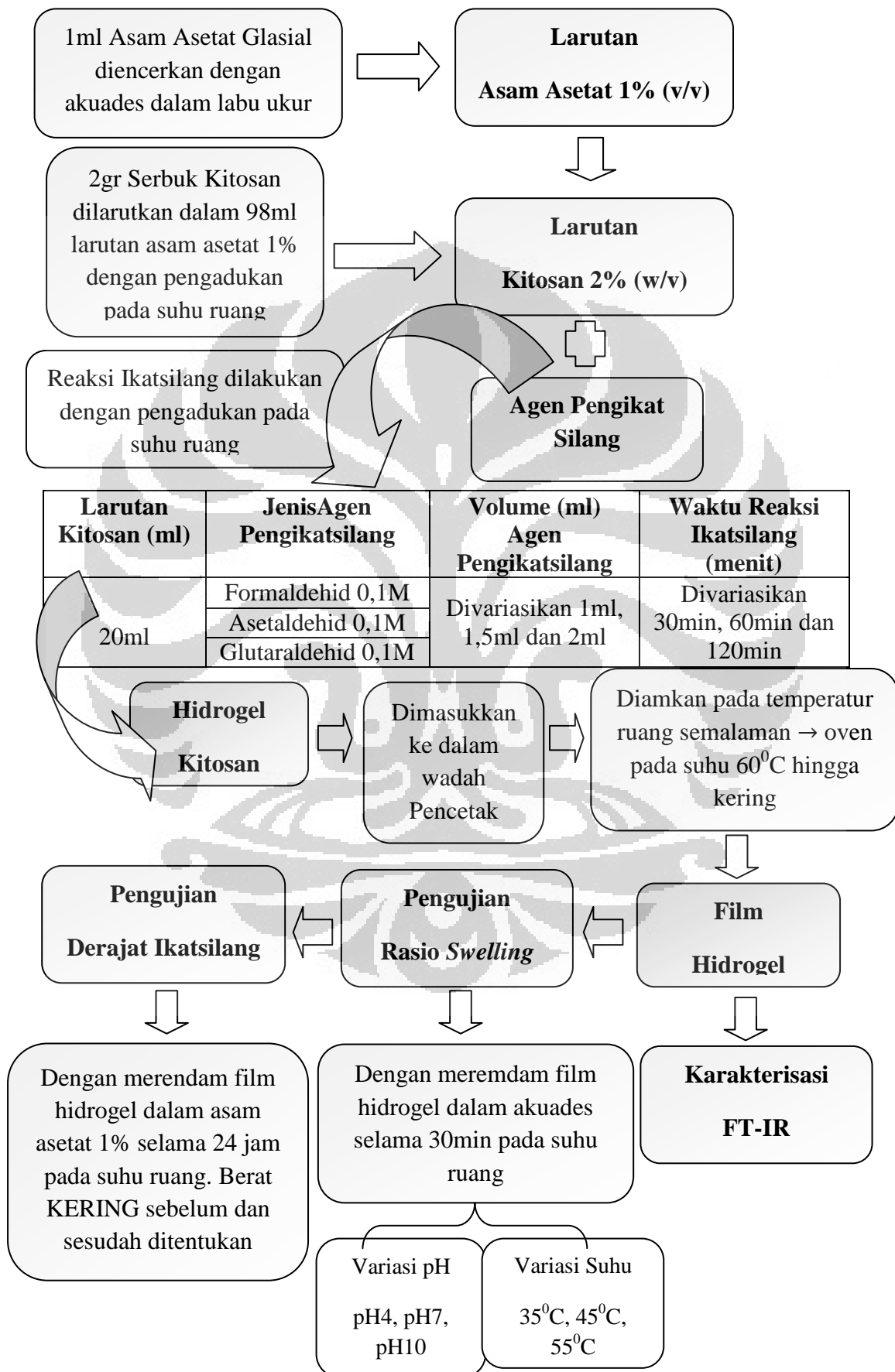
- Abdel-Mohzen, A.M., Aly, A.S., Hrdina, R., Montaser, A.S., Hebeish, A. (2011). Eco-Synthesis of PVA/Chitosan Hydrogels for Biomedical Application. *J Polym Environ*, 19 : 1005–1012.
- Aly, A.S. (1998). Self-dissolving chitosan. I. Preparation and characterisation and evaluation for drug delivery system. *Angew Macromolecular Chemistry*, 259 : 33-38.
- Bajpai, A. K. & Giri, A. (2002). Swelling dynamics of a macromolecular hydrophilic network and evaluation of its potential for controlled release of agrochemicals. *Reactive & Functional Polymers*, 53, 125–141.
- Baroni, P., Vieira, R S., Meghetti, E., Silva, M G C., Beppu, M M. (2008). Evaluation of batch adsorption of chromium ions on natural and crosslinked chitosan membranes. *Journal of Hazardous Materials*, 152, 1155–1163.
- Berg, J. C., and Bhosale, P. (2010). Acoustic spectroscopy for colloids dispersed in a polymer gel system., *Langmuir*, 26, 14423-14426.
- Chengjun Zhou., & Qinglin Wu. (2011). A novel polyacrylamide nanocomposite hydrogel reinforced with natural chitosan nanofibers. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 84, 155-162.
- Chunyu Chang., Si Chen., Lina Zhang. (2011). Novel hydrogels prepared via direct dissolution of chitin at low temperature : structure and biocompatibility. *J Mater Chem*, 21 , 3865-3871.
- Erizal., & Redja, I Wayan. (2010). Sintesis Hidrogel Superabsorben Polietilen Oksida-Alginat dengan Teknik Radiasi Gamma dan Karakterisasinya. *Jurnal Ilmu Kefarmasian Indonesia*, 8, 11-17.
- Gooch, Jan W. 2002. *Emulsification and Polymerization of Alkyd Resins*. Georgia Institute of Technology : Atlanta Georgia.
- Hennik, W.E., Nostrum, C.F van. (2002). Novel crosslinking methods to design hydrogels. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 54, 13-36.
- Hiroaki Tanuma., Takashi Saito., Kenichi Nishikawa., Tungalag Dong., Koji Yazawa., Yoshio Inoue. (2010). Preparation and characterization of PEG-

- cross-linked chitosan hydrogel films with controllable swelling and enzymatic degradation behavior. *Carbohydrate Polymer*, 80, 260-265.
- Hiroshima Tamura., Hideaki Nagahama., Seiichi Tokura. (2006). Preparation of chitin hydrogel under mild conditions. *Cellulose*, 13, 357-364.
- Hoffman, Allan S. (2002). Hydrogels for biomedical applications. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 43, 3-12.
- Hyunmin Yi., Li-Qun Wu., Bentley, William E., Ghodssi, Reza., Rubloff, Gary W., Culver, James N., Payne, Gregory F. (2005). Biofabrication with chitosan. *Biomacromolecules*, 6, 6.
- Kumara, Sudheesh P.T., Srinivasan, Sowmya., Lakshmanan, Vinoth-Kumar., Tamura, H., Nair, S.V., Jayakumar, R. (2011). Synthesis, characterization and cytocompatibility studies of  $\alpha$ -chitin hydrogel/nano hydroxyapatite composite scaffolds. *International Journal of Biological Macromolecules*, 49, 20-31.
- Lin-Gibson, Sheng., Walls, Howard J., Kennedy, Scott B., Welsh, Eric R. (2003). Reaction kinetics and gel properties of blocked diisocyanate crosslinked chitosan hydrogels. *Carbohydrate Polymers*, 54, 193-199.
- Monterio, O.A.C. and Airoidi, C. (1999). Some studies of crosslinking chitosan-glutaraldehyde interaction in a homogeneous system. *International Journal of Biological Macromolecules*, 26, 119-128.
- Nagahama, H., Maeda, H., Kashiki, T., Jayakumar, R., Furuike, T., Tamura, H. (2009). Preparation and characterization of novel chitosan/gelatin membranes using chitosan hydrogel. *Carbohydrate Polymers*, 76, 255-260.
- Qu, X., Wirsen, A., Albertsson, A.-C. (2000). Novel pH-sensitive chitosan hydrogels : swelling behavior and states of water. *Polymer*, 41, 4589-4598.
- Rohindra, David R., Nand, Ashveen V., Khurma, Jagjit R. (2004). Swelling properties of chitosan hydrogels. *The South Pasific Journal Of Natural Science*, 22, 32-35.
- Schacht, E., Gevaert, A., Kenawy, ER., Molly, K., Verstraete, W., Adriaensens, P., Caleer, R., Gelan, J. (1996). Polymers for colon specific drug delivery. *J Control Release*, 39, 327-338.

- Shu-Guang Wang., Xue-Fei Sun., Xian-Wei Liu., Wen-Xin Gong., Bao-Yu Gao., Nan Bao. (2008). Chitosan hydrogel beads for fulvic acid adsorption: Behaviors and mechanisms. *Chemical Engineering Journal*, 142, 239-247.
- Singh, A., Narvi, S.S., Dutta, P.K., Pandey, N.D. (2006). External stimuli response on a novel chitosan hydrogel crosslinked with formaldehyde. *Bull Mater Sci*, 29, 233-238.
- Spagnola, Cristiane., Rodrigues, Francisco H.A., Pereira, Antonio G.B., Fajardo, André R., Rubira, Adley F., Muniz, Edvani C. (2012). Superabsorbent hydrogel composite made of cellulose nanofibrils and chitosan-graft-poly(acrylic acid). *Carbohydrate Polymers*, 87, 2038-2045.
- Suyatma, Nugraha Edhi., Copinet, Alain., Legin-Copinet, Estelle., Fricoteaux, Florence., Coma, Véronique. (2011). Different PLA Grafting Techniques on Chitosan. *J Polym Environ*, 19 : 166-171.
- Vieira, Rodrigo.S., Beppu, Marisa M. (2006). Interaction of natural and crosslinked chitosan membranes with Hg(II) ions. *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, 279, 196-207.
- Wan Ngah, W.S., Hanafiah, M.A.K.M., Yong, S.S. (2008). Adsorption of humic acid from aqueous solutions on crosslinked chitosan-epichlorohydrin beads: Kinetics and isotherm studies. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 65, 18-24.
- Wu, J., Lin, J., Li, G., Wei, C. (2001). Influence of the COOH and COONa groups and crosslink density of poly(acrylic acid) / montmorillonite superabsorbent composite on water absorbency. *Polym Int*, 50, 1050–1053.
- Xian Zhao., Koichi Kato., Yoshio Fukumoto., Katsuhiko Nakamae. (2001). Synthesis of bioadhesive hydrogels from chitin derivatives. *International Journal of Adhesion & Adhesives*, 21, 227-232.

## DAFTAR LAMPIRAN

**Lampiran 1.** Diagram Alir Penelitian



## Lampiran 2. Data Pengujian Waktu Reaksi Ikat Silang Optimum

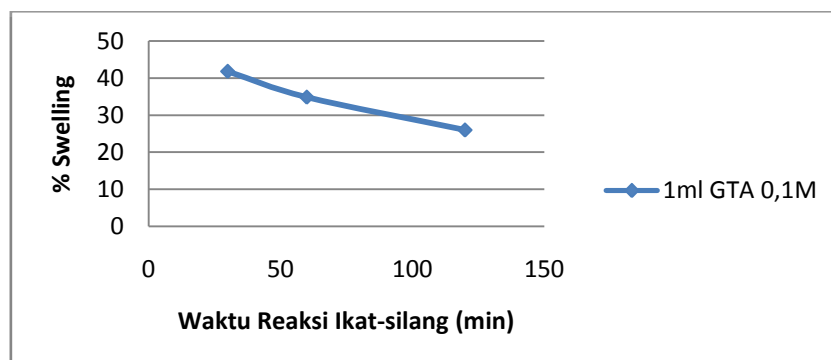
- Film hidrogel kitosan terikat silang dengan waktu reaksi ikat silang yang berbeda ditimbang berat keringnya, kemudian direndam dalam aquades selama 30 menit. Berat hidrogel mengembang (*swollen*) ditimbang setelah *blotting* (proses penghilangan sisa air pada permukaannya).

30 Menit	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,047
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0686
	0,0666
	0,0647
W1 Rata-rata	0,0666
% Swelling	41,7730

60 Menit	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0427
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0589
	0,0578
	0,056
W1 Rata-rata	0,0576
% Swelling	34,8165

120 Menit	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0416
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0549
	0,0523
	0,0500
W1 Rata-rata	0,0524
% Swelling	25,9615

Waktu Rx.Ikat Silang (min)	% Swelling
30	41,7730
60	34,8165
120	25,9615



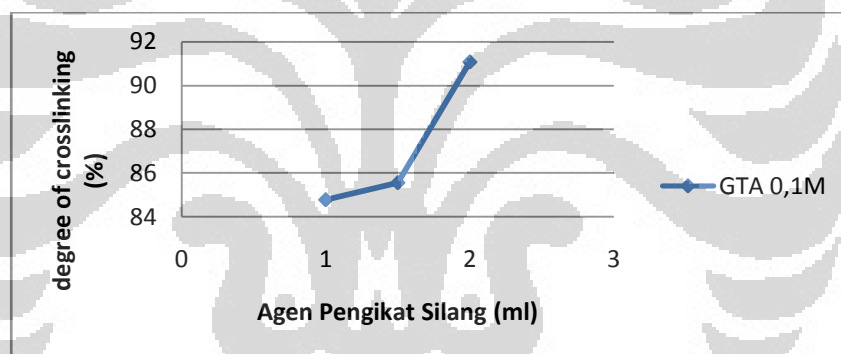


### Lampiran 3. Data Pengujian Persen Derajat Ikat Silang Hidrogel Kitosan

- Setelah diketahui waktu reaksi ikat silang optimum, disintesis hidrogel kitosan terikat silang dengan agen pengikat silang yang berbeda, yaitu Formaldehid (FA), Asetaldehid (AA) dan Glutaraldehid (GTA), dengan menggunakan waktu reaksi ikat silang yang telah diperoleh.
- Film hidrogel kitosan terikat silang yang telah diketahui berat keringnya, direndam dalam pelarutnya (asam asetat 1%) selama 24 jam pada suhu ruang – dikeringkan – ditimbang berat kering setelahnya – ditentukan %DC (Persen derajat Ikat Silang).
- Hasil yang diperoleh :

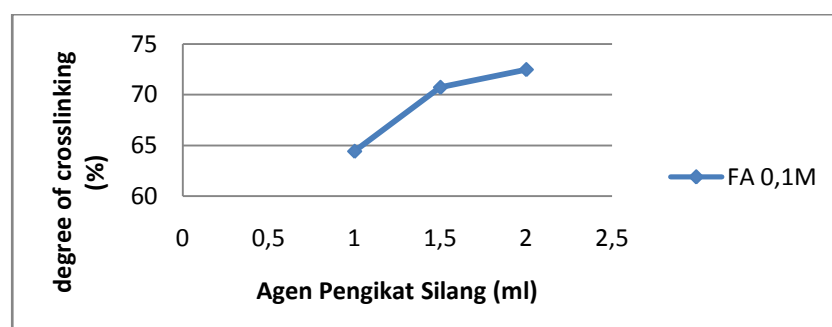
#### 1. Derajat Crosslinking Hidrogel Kitosan Tercrosslink Glutaraldehid (GTA) 0,1M

Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. GTA 0,1M (ml)	Berat Before (W0)	Berat After (W1)	%DC
20	1	0,0368	0,0312	84,7826
20	1,5	0,0554	0,0474	85,5596
20	2	0,0347	0,0316	91,0663



#### 2. Derajat Crosslinking Hidrogel Kitosan Tercrosslink Formaldehid (FA) 0,1M

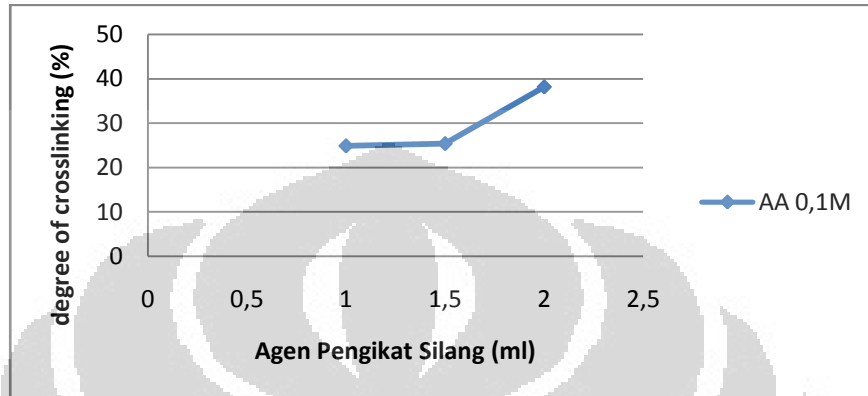
Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. FA 0,1M (ml)	Berat Before (W0)	Berat After (W1)	%DC
20	1	0,0503	0,0324	64,4135
20	1,5	0,0403	0,0285	70,7196
20	2	0,0494	0,0358	72,4696



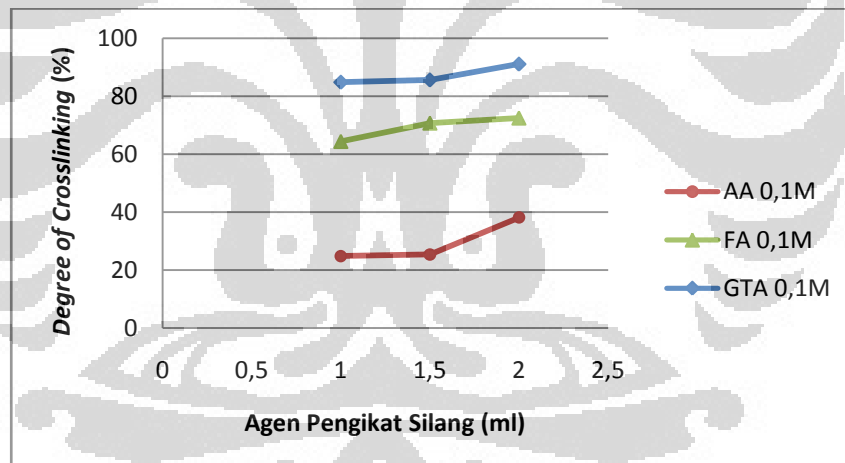
(Lanjutan)

### 3. Derajat Crosslinking Hidrogel Kitosan Tercrosslink Asetaldehid (AA) 0,1M

Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. AA 0,1M (ml)	Berat Before (W0)	Berat After (W1)	%DC
20	1	0,0511	0,0127	24,8532
20	1,5	0,0493	0,0125	25,3550
20	2	0,0375	0,0143	38,1333



### 4. Kurva Keseluruhan



#### Lampiran 4. Data Pengujian *Swelling* Hidrogel Kitosan Terikat Silang

- Film hidrogel kitosan terikat silang yang telah diketahui berat keringnya, direndam dalam aquades selama 30 menit pada suhu ruang – *blotting* (menghilangkan sisa air dipermukaan dengan menempelkan kertas saring perlahan – ditimbang berat hidrogel mengembang (*swollen*) – ditentukan % rasio *swelling*

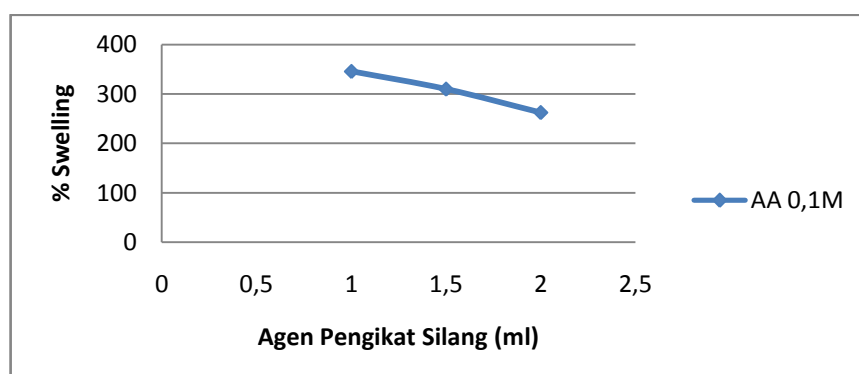
##### 1. *Swelling* Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid (AA) 0,1M

Variasi A	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0526
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,2449
	0,2333
	0,225
W1 Rata-Rata	0,2344
% Swelling	345,6274

Variasi B	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0519
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,2168
	0,2128
	0,2085
W1 Rata-Rata	0,2127
% Swelling	309,8266

Variasi C	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0558
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,207
	0,2016
	0,1979
W1 Rata-Rata	0,2022
% Swelling	262,3058

Nama Label	Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. Asetaldehid (ml)	% Swelling
Variasi A	20	1	345,6274
Variasi B	20	1,5	309,8266
Variasi C	20	2	262,3058



(Lanjutan)

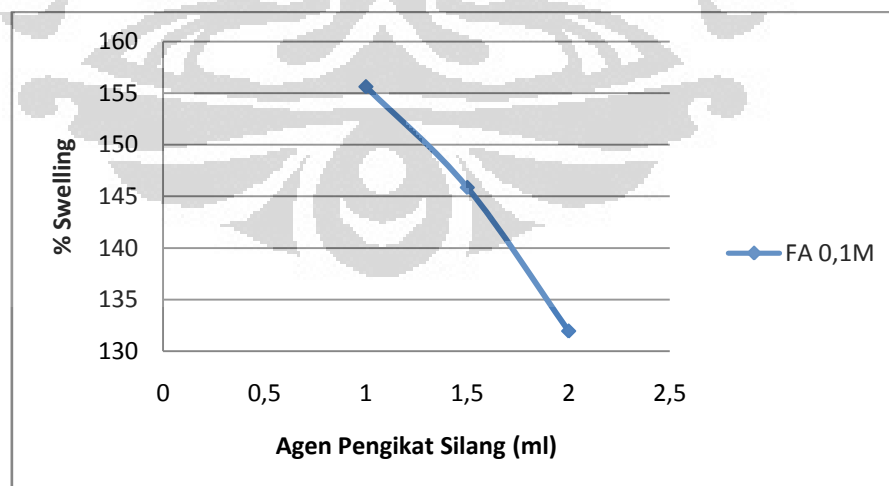
## 2. Swelling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Formaldehid (FA) 0,1M

Variasi A	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0458
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1197
	0,1171
	0,1144
W1 Rata-Rata	0,1171
% Swelling	155,6041

Variasi B	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0509
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1273
	0,1252
	0,1229
W1 Rata-Rata	0,1251
% Swelling	145,8415

Variasi C	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0526
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1247
	0,1217
	0,1196
W1 Rata-Rata	0,1220
% Swelling	131,9392

Nama Label	Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. Formaldehid (ml)	% Swelling
Variasi A	20	1	155,6041
Variasi B	20	1,5	145,8415
Variasi C	20	2	131,9392



(Lanjutan)

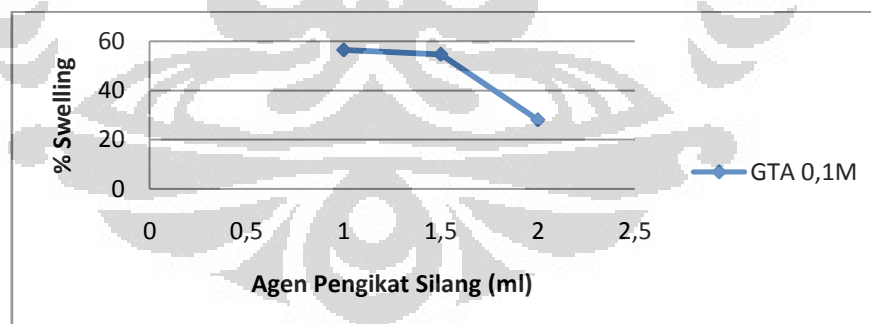
### 3. Swelling Hidrogel Kitosan Terikat silang Glutaraldehyd (GTA) 0,1M

Variasi A	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0474
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0759
	0,0739
	0,0726
W1 Rata-Rata	0,0741
% Swelling	56,3994

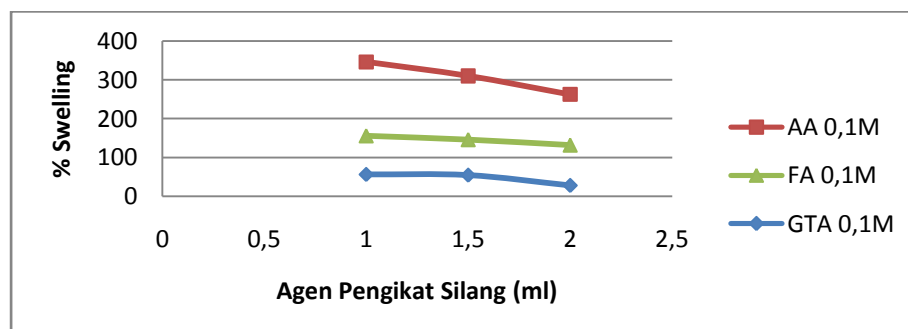
Variasi B	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,0509
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0799
	0,0789
	0,0773
W1 Rata-Rata	0,0787
% Swelling	54,6169

Variasi C	
Berat Hidrogel Kering (W0)	0,049
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0642
	0,0628
	0,0613
W1 Rata-Rata	0,0628
% Swelling	28,0952

Nama Label	Vol. Larutan Kitosan (ml)	Vol. Glutaraldehyd (ml)	% Swelling
Variasi A	20	1	56,3994
Variasi B	20	1,5	54,6169
Variasi C	20	2	28,0952



### 4. Kurva Keseluruhan



### Lampiran 5. Data Pengujian *Swelling* Hidrogel Kitosan Dalam pH Medium Berbeda

- Film hidrogel kitosan terikat silang yang telah diketahui berat keringnya, direndam dalam medium cairnya pH 4,7, dan 10 selama 30 menit pada suhu ruang – *blotting* (menghilangkan sisa air dipermukaan dengan menempelkan kertas saring perlahan – ditimbang berat hidrogel mengembang (*swollen*) – ditentukan % rasio *swelling*

#### 1. Sweling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid (AA) 0,1M

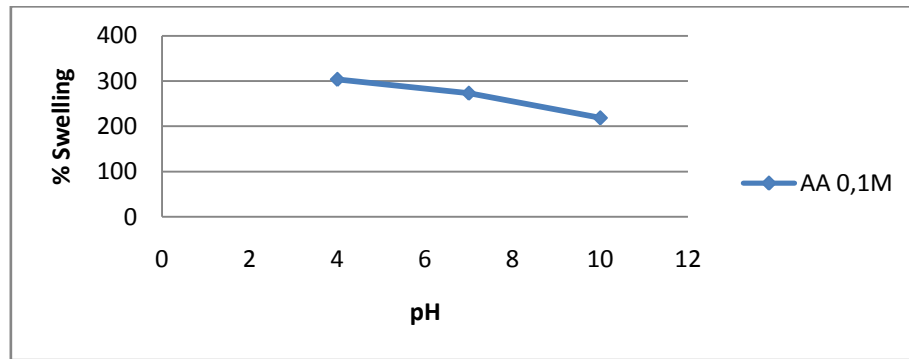
pH 4	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0476
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,2196
	0,2108
	0,1998
	0,1905
	0,17
	0,1616
W1 Rata-rata	0,1921
% Swelling	303,4664

pH 7	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0473
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1919
	0,1858
	0,18
	0,1722
	0,1671
	0,1614
W1 Rata-rata	0,1764
% Swelling	272,9387

pH 10	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0604
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,2229
	0,2036
	0,1953
	0,188
	0,1775
	0,1669
W1 Rata-rata	0,192367
% Swelling	218,4879

%Swelling	pH
303,4664	4
272,9387	7
218,4879	10

(Lanjutan)



## 2. Sweling Hidrogel Kitosan tercrosslink Formaldehid (FA) 0,1M

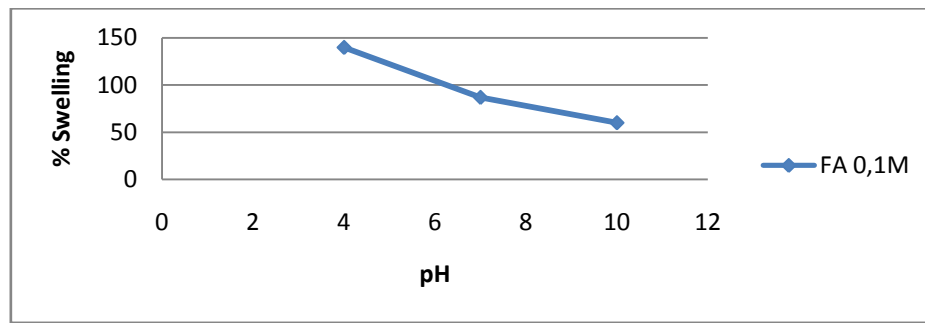
pH 4	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0542
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1416
	0,1355
	0,132
	0,1272
	0,1232
	0,1203
W1 Rata-rata	0,1300
% Swelling	139,7909

pH 7	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0452
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0902
	0,0885
	0,0858
	0,0830
	0,0810
	0,0785
W1 Rata-rata	0,0845
% Swelling	86,9469

pH 10	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0287
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0565
	0,0504
	0,0452
	0,0427
	0,0412
	0,0398
W1 Rata-rata	0,0460
% Swelling	60,1626

%Swelling	pH
139,7909	4
86,9469	7
60,1626	10

(Lanjutan)



### 3. Sweling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Glutaraldehyd (GTA) 0,1M

pH 4	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0334
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0652
	0,0518
	0,0438
	0,0399
	0,0377
	0,0355
W1 Rata-rata	0,0457
% Swelling	36,6767

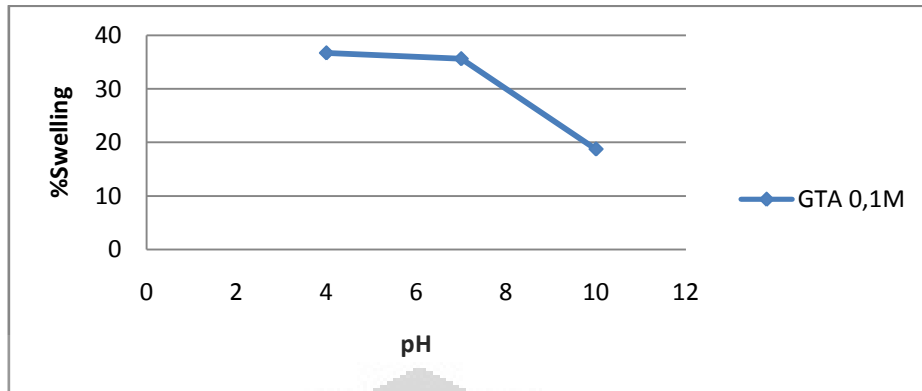
pH 7	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0369
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0555
	0,0525
	0,0503
	0,0491
	0,0479
	0,0449
W1 Rata-rata	0,0500
% Swelling	35,5917

pH 10	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0453
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0590
	0,0570
	0,0547
	0,0520
	0,0507
	0,0493
W1 Rata-rata	0,0538
% Swelling	18,7270

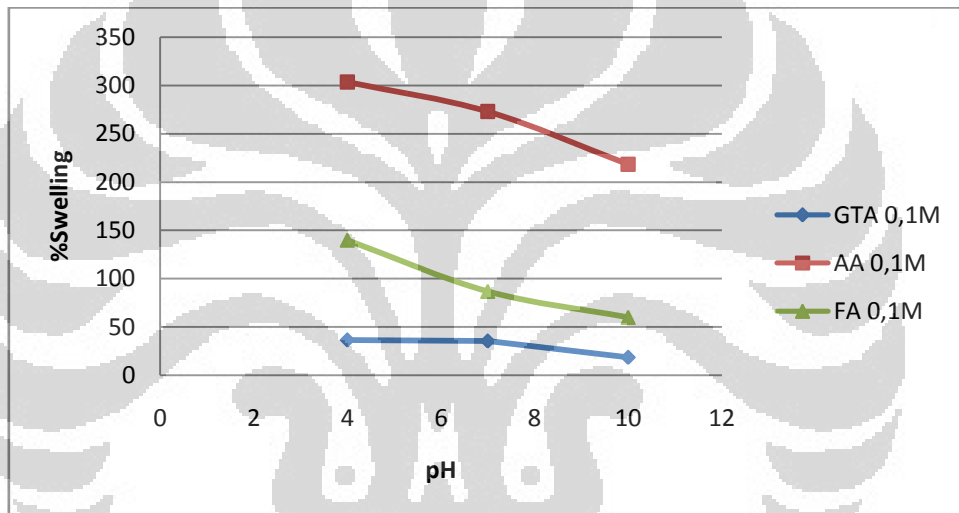
%Swelling	pH
36,6767	4
35,5917	7
18,7270	10



(Lanjutan)



#### 4. Kurva Keseluruhan



### Lampiran 6. Data Pengujian *Swelling* Hidrogel Kitosan Dalam Suhu Medium Berbeda

- Film hidrogel kitosan terikat silang yang telah diketahui berat keringnya, direndam dalam medium cairnya suhu 35°C, 45°C dan 55°C selama 30 menit pada suhu ruang – *blotting* (menghilangkan sisa air dipermukaan dengan menempelkan kertas saring perlahan – ditimbang berat hidrogel mengembang (*swollen*) – ditentukan % rasio *swelling*

#### 1. Sweling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Formaldehid (FA) 0,1M

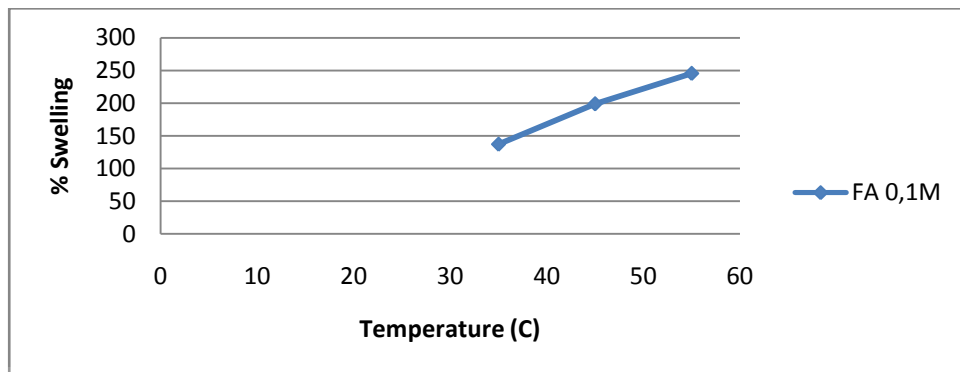
Suhu 35°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0365
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0970
	0,0922
	0,0880
	0,0847
	0,0814
	0,0766
<b>W1 Rata-rata</b>	0,0867
<b>% Swelling</b>	137,3973

Suhu 45°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0509
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1625
	0,1588
	0,1548
	0,1501
	0,1459
	0,1409
<b>W1 Rata-rata</b>	0,1522
<b>% Swelling</b>	198,9522

Suhu 55°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0318
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1184
	0,115
	0,1117
	0,1079
	0,1042
	0,1018
<b>W1 Rata-rata</b>	0,1098
<b>% Swelling</b>	245,3878

<b>%Swelling</b>	<b>Suhu (C)</b>
137,3973	35
198,9522	45
245,3878	55

(Lanjutan)



## 2. Sweling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid (AA) 0,1M

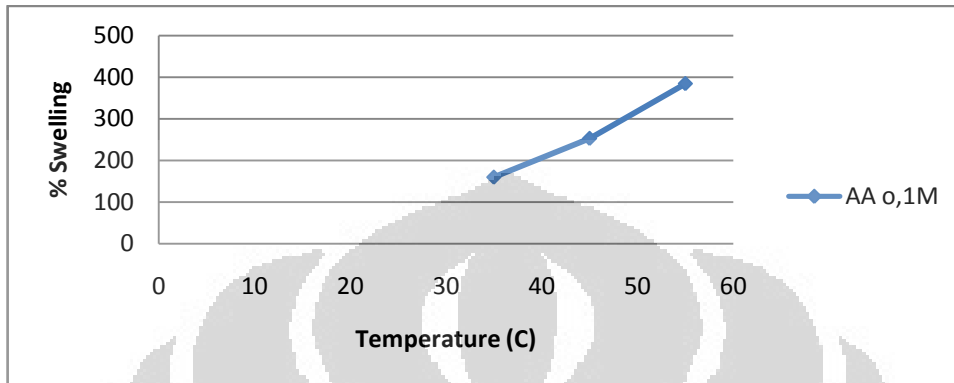
Suhu 35°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0495
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1411
	0,1363
	0,1312
	0,1264
	0,1214
	0,115
W1 Rata-rata	0,1286
% Swelling	159,7306

Suhu 45°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0340
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,1318
	0,1266
	0,1218
	0,1170
	0,1126
	0,1098
W1 Rata-rata	0,1199
% Swelling	252,7451

Suhu 55°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0424
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,2155
	0,2107
	0,2064
	0,2033
	0,1998
	0,1962
W1 Rata-rata	0,2053
% Swelling	384,2374

(Lanjutan)

%Swelling	Suhu (C)
159,7306	35
252,7451	45
384,2374	55



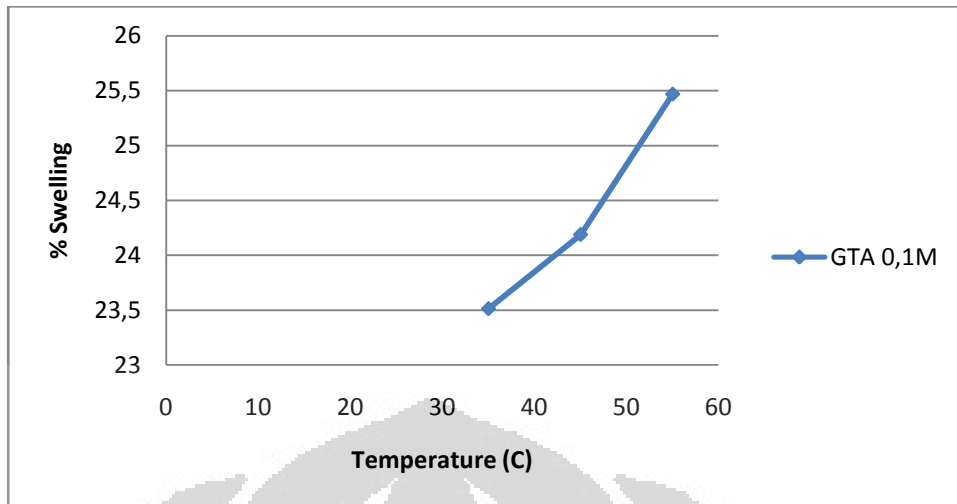
### 3. Sweling Hidrogel Kitosan Terikat Silang Glutaraldehid (GTA) 0,1M

Suhu 35°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0499
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0698
	0,0655
	0,0626
	0,0600
	0,0576
	0,0543
W1 Rata-rata	0,0616
% Swelling	23,5137

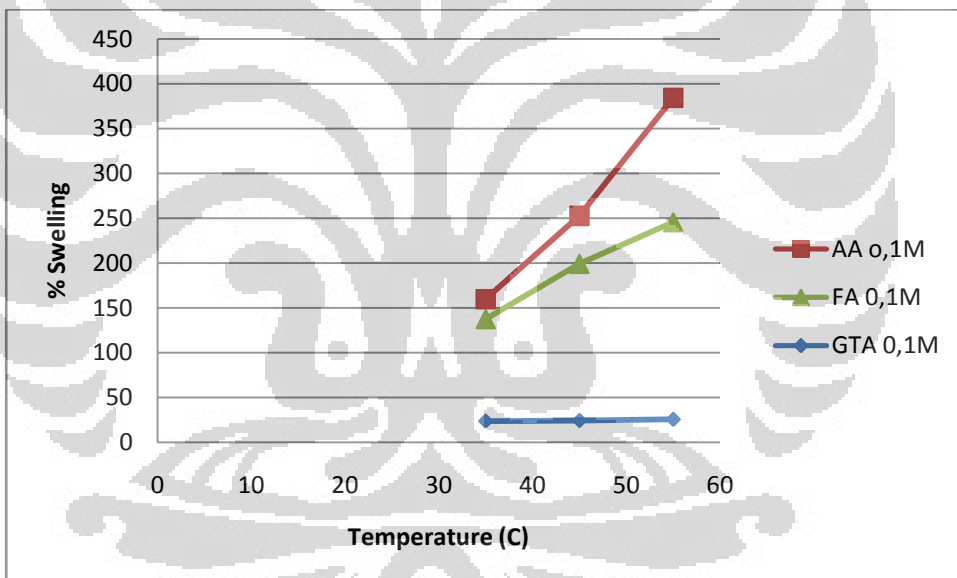
Suhu 45°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0339
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0474
	0,0442
	0,0424
	0,0408
	0,0396
	0,0382
W1 Rata-rata	0,0421
% Swelling	24,1888

Suhu 55°C	
Berat kering sebelum swelling (W0)	0,0392
Berat Hidrogel Swollen (W1)	0,0641
	0,055
	0,0493
	0,0456
	0,0418
	0,0393
W1 Rata-rata	0,0492
% Swelling	25,4677

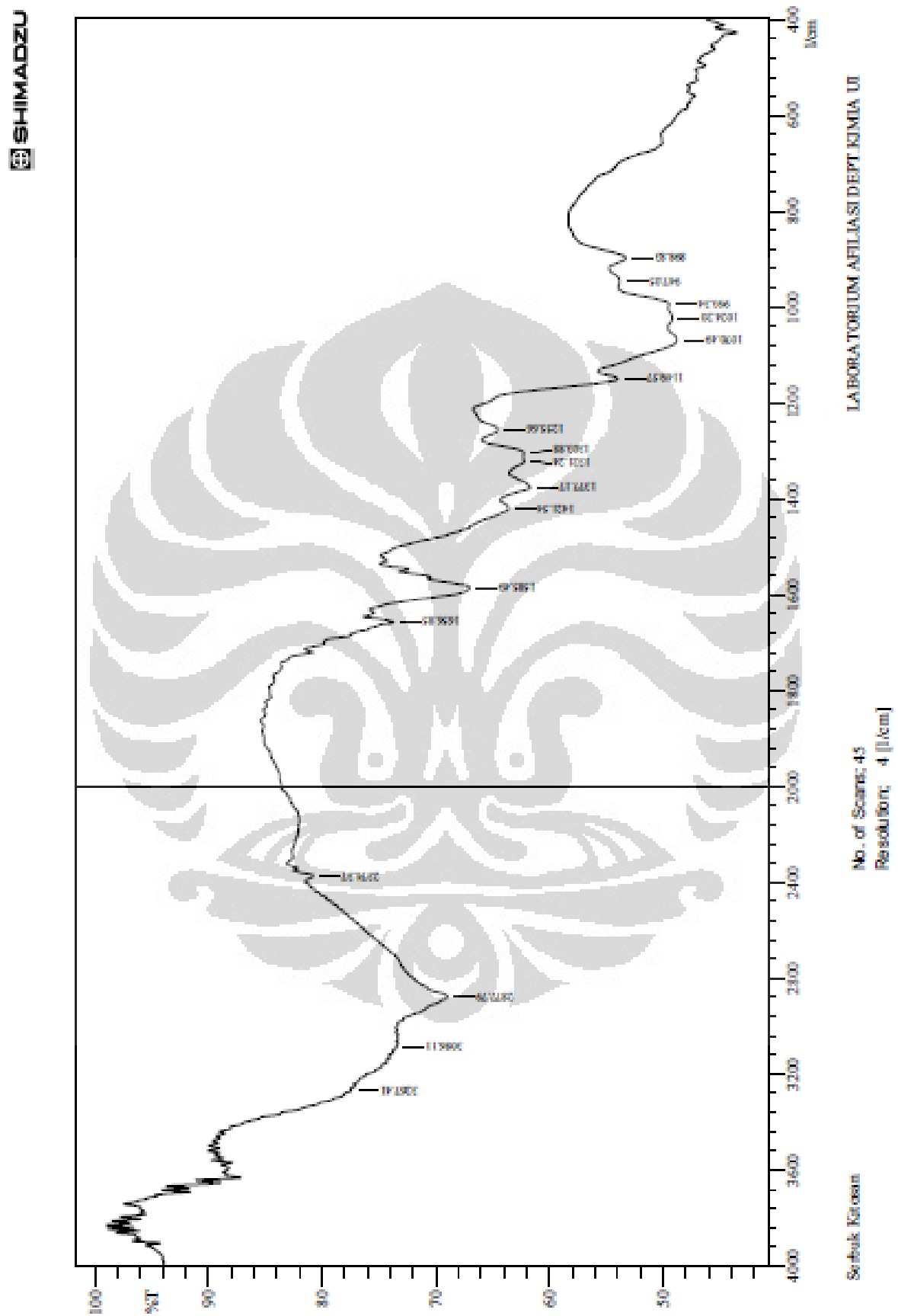
(Lanjutan)



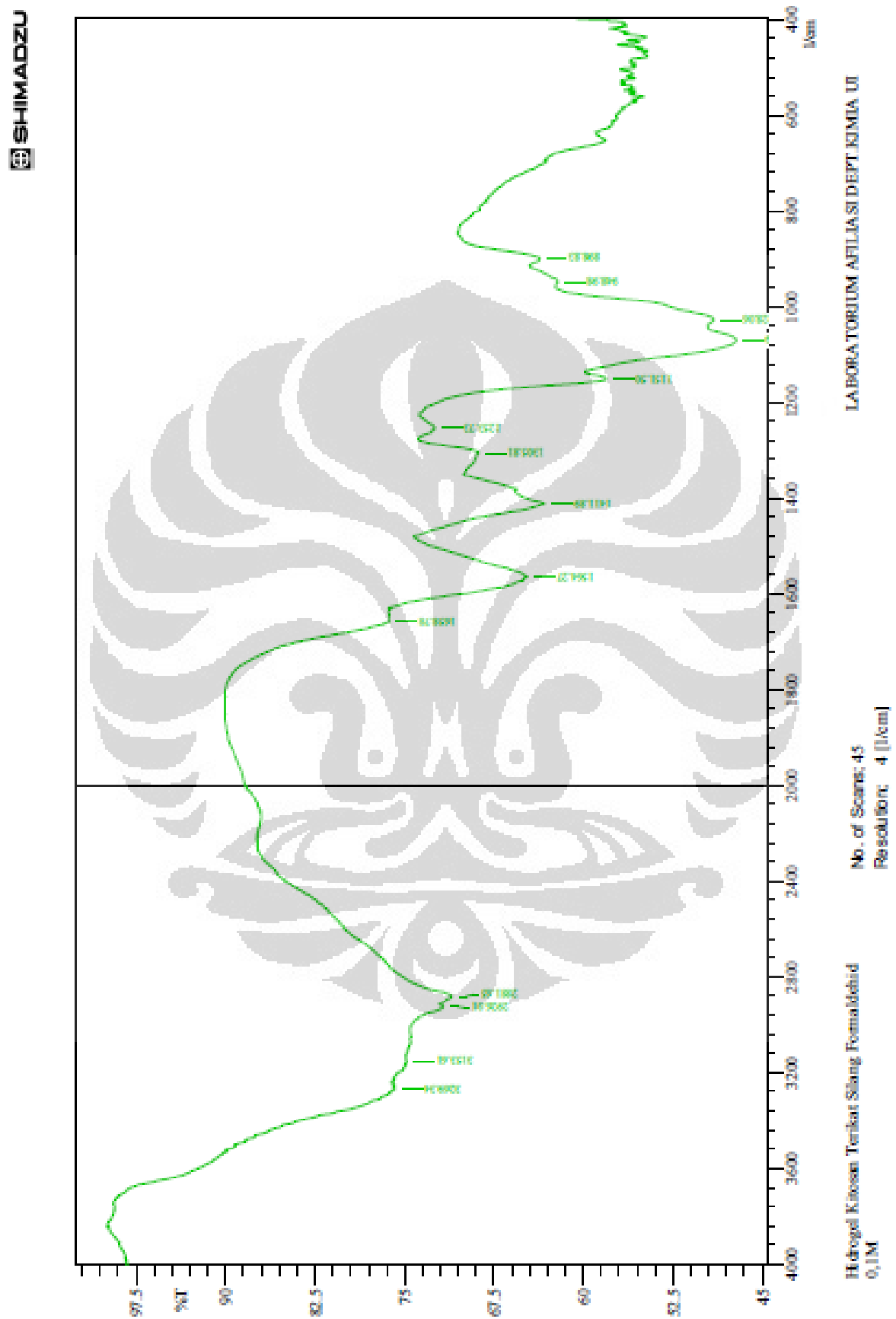
#### 4. Kurva Keseluruhan



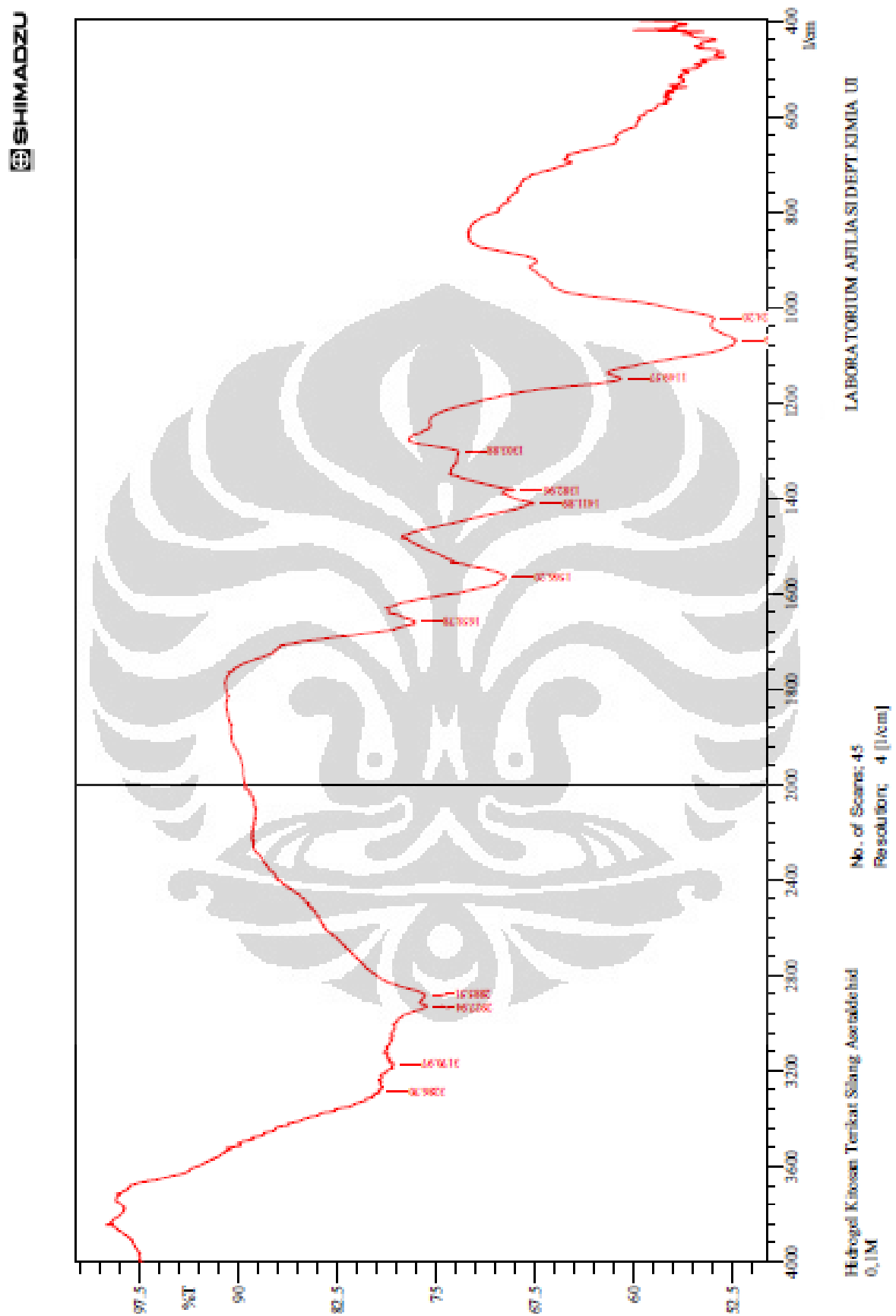
## Lampiran 7. Spektrum FTIR Serbuk Kitosan



Lampiran 8. Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Formaldehid 0,1M



Lampiran 9. Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Asetaldehid 0,1M





Lampiran 10. Spektrum FTIR Hidrogel Kitosan Terikat Silang Glutaraldehid 0,1M

