

KESTABILAN PANAS *BIONOLLE* HASIL RADIASI PENGIKATAN SILANG

Saeful Yusuf¹ dan Meri Suhartini²

¹ Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN)-BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong1 5310, Tangerang

²Pusat Aplikasi Teknologi Isotop dan Radiasi (PATIR)-BATAN
Jl.Raya Cinere Pasar Jumat, Jakarta Selatan12720

ABSTRAK

KESTABILAN PANAS *BIONOLLE* HASIL RADIASI PENGIKATAN SILANG. *Bionolle* dengan nama kimia Poli(butilen suksinat-co-adipat) (*PBS*), di iradiasi menggunakan berkas elektron pada suhu ruangan dengan penambahan polifungsional monomer sebagai aditif. Dari dua jenis polifungsional monomer yang dipergunakan diperoleh bahwa hasil kandungan gel tertinggi diperoleh bila *PBS* di campur dengan trimetalil isosianurat (*TMAIC*). Jumlah *TMAIC* yang ditambahkan sangat berpengaruh pada jumlah gel yang dihasilkan. Diperoleh bahwa *PBS* iradiasi yang mengandung 1%*TMAIC* menghasilkan kandungan gel lebih tinggi dibandingkan dengan *PBS* iradiasi yang mengandung 2 %*TMAIC* atau 3 %*TMAIC* pada dosis iradiasi 50 kGy. Diperoleh bahwa ikatan silang yang terjadi meningkatkan kestabilan panasnya, sebaliknya juga mengurangi kemampuan *PBS* untuk terdegradasi. Dari percobaan ini dapat disimpulkan bahwa *TMAIC* sebagai aditif pada iradiasi *PBS* secara nyata meningkatkan kestabilan panas dari sampel.

Kata kunci : Ikatan silang, *Bionolle*, Poli(butilen suksinat-co-adipat), Trimetalil isosianurat, Polimer biodegradable

ABSTRACT

THE HEAT STABILITY OF RADIATION CROSSLINKED OF BIONOLLE. *Bionolle* with chemical names Poly (butylene succinate-co-adipate) (*PBS*), were irradiated using electron beam (EB) in the presence of two different polyfunctional monomers at ambient temperature. It was pointed out that the highest amount of gel fraction could be achieved when *PBS* was blend with trimethylal isocyanurate (*TMAIC*). It was obtained that crosslinked *PBS* containing 1% of *TMAIC* produces higher gel fraction than that crosslinked *PBS* containing 2 or 3% of *TMAIC* at dose of 50 kGy. It was observed that the presence of crosslinking bonds in irradiated *PBS* greatly improved its heat stability as well as diminished its ability to biodegradation. Accordingly, it can be concluded that crosslinked *PBS* in the presence of *TMAIC* has significantly improved heat resistant properties.

Key words : Crosslink, *Bionolle*, Poli(butilen suksinat-co-adipat), Trimetalil isosianurat, Biodegradable polimer

PENDAHULUAN

Pada akhir-akhir ini perhatian dari pemerhati lingkungan banyak tertuju pada kantong plastik yang tidak mampu terdegradasi dan limbah dari industri plastik. Masalah plastik tersebut merupakan salah satu masalah yang sangat serius pada usaha pelestarian lingkungan hidup.

Perusahaan *Showa high polymer Co. Ltd* telah mengembangkan polimer yang memiliki berat molekul besar dengan kisaran puluhan ribu sampai ratusan ribu dari jenis kopoliester *poly(butylene succinate-co-adipate)*, dengan nama komersial *bionolle*. *Bionolle* merupakan suatu polimer yang dapat dibiodegradasi (*biodegradable*) dan secara ekonomis paling kompetitif [1]. Polimer ini banyak digunakan dalam bidang

pertanian sebagai plastik pelindung tanaman dan pupuk *slow release*, juga biasa digunakan sebagai kantong plastik, tali tambang dan dalam bidang medis. Namun demikian, polimer ini memiliki kelemahan pada sifat termalnya sehingga dalam penggunaannya terbatas. Beberapa teknik proses dapat digunakan untuk meningkatkan sifat polimer *biodegradable* tersebut yaitu *blending* dan kopolimerisasi [2].

Penelitian yang dilakukan sebelumnya menunjukkan bahwa proses iradiasi dingin terhadap *Poly(ϵ -caprolactone)* (*PCL*) dapat meningkatkan ketahanan panas dan kemampuan proses [3]. Penelitian yang dilakukan terhadap *poly(butylene succinate)* (*PBS*) menghasilkan suatu busa

biodegradable, apabila polimer tersebut diiradiasi dengan berkas elektron [4]. Polimer PBS dengan penambahan aditif yang cocok maka kestabilan panas, sifat mekanik dan kemampuan proses dari plastik dapat ditingkatkan. Penelitian lain juga menunjukkan bahwa dengan mendistribusikan suatu monomer yang spesifik ke dalam rantai polimer poliester alifatik dapat meningkatkan kemampuan biodegradasinya [5,6]. Selain itu penambahan aditif dengan gugus aromatik ke dalam polimer dapat meningkatkan sifat fisik dari poliester alifatik [7,8].

Teknologi radiasi untuk pembentukan ikatan silang suatu bahan polimer sering digunakan dalam bidang industri. Pembentukan ikatan silang dimaksudkan untuk meningkatkan kualitas bahan sesuai dengan yang diinginkan, seperti kestabilan termal dan sifat mekanik. PBS memiliki suhu pelelehan pada kisaran 90 °C hingga 120 °C dan sifat termalnya seperti polietilen. Namun demikian PBS memiliki kelemahan seperti mudah mengalami deformasi bila terkena air panas, sehingga perlu dilakukan peningkatan kestabilan panas dari polimer tersebut agar dapat dimanfaatkan seluas-luasnya. Pada penelitian ini akan dilakukan reaksi pengikatan silang diantara PBS dengan monomer yang memiliki beberapa gugus fungsi menggunakan teknologi radiasi pengion. Hasil yang diharapkan terbentuk suatu polimer yang memiliki kestabilan panas yang lebih baik dibandingkan PBS semula.

METODE PERCOBAAN

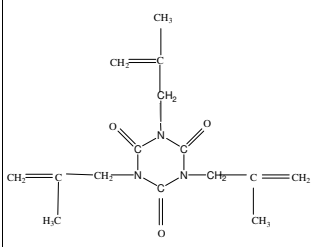
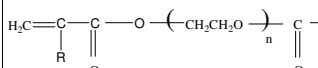
Bahan

Bahan polimer yang digunakan dalam penelitian ini adalah Poly(butylene succinate-co-adipate) yang diproduksi oleh Showa High Polymer Co. Ltd., Japan

Tabel 1. Sifat-sifat bionole #3001

Nama bahan	Mw	Mw/Mn	Titik leleh (°C)	Density (g/cm ³)	ΔH (J/g)
Bionole#3001 (Poly(butylene succinate-co-adipate))	2.96 x 10 ⁵	2.0	92	1.23	45

Tabel 2. Struktur monomer trimethyllyl isocyanurate (TMAIC)

Nama Monomer	Struktur	BM
Trimethyllyl isocyanurate (TMAIC)		291
Polyethyleneglycol dimethyl methacrylate (4G)		330 (4G)

dengan nama dagang bionolle#3001. Sifat dari PBS ditunjukkan pada Tabel 1.

Monomer yang ditambahkan pada PBS sebagai aditif adalah monomer yang memiliki beberapa gugus fungsi yaitu trimethyllyl isocyanurate (TMAIC) dan polyethyleneglycol dimethyl methacrylate (4G). Struktur molekul kedua monomer tersebut ditunjukkan pada Tabel 2.

Preparasi dan Iradiasi Sampel

Kandungan monomer dalam komposisi akhir polimer ditampilkan dalam persen rasio monomer terhadap total berat sampel. PBS dan aditif dicampur dalam labu plastomill model 50C150 (Toyo Seiki), dengan kecepatan = 20 rpm, kemudian sampel ditekan menggunakan alat Ikeda hot press pada suhu = 150 °C, tekanan = 120 kgf/cm² sehingga membentuk lembaran dengan ketebalan = 0,5 mm dan dilakukan pemanasan awal selama 3 menit. Sampel dipanaskan kembali selama 3 menit pada suhu dan tekanan yang sama.

Selanjutnya dilakukan proses tekan dingin pada suhu kamar menggunakan pendingin air. Sampel yang akan diiradiasi dimasukkan ke dalam kantong plastik. Iradiasi sampel dilakukan dengan akselerator elektron yang memiliki energi = 2 MeV, arus = 1 mA dan laju dosis = 10 kGy/pass sehingga mencapai dosis yang bervariasi dari 10 kGy hingga 100 kGy.

Pengukuran Fraksi Gel

Kandungan gel dalam sampel yang telah diiradiasi diukur setelah sampel diekstraksi dalam kloroform mendidih selama 48 jam untuk menghilangkan bagian terlarut. Fraksi gel dihitung berdasarkan rasio berat kering gel terhadap berat polimer mula-mula sesuai Persamaan 1.

$$\text{Fraksi gel (\%)} = [(W_g/W_i)] \times 100\% \quad \dots\dots\dots (1)$$

dimana :

- W_g = Berat gel
- W_i = Berat sampel mula-mula.

Pengujian Sifat Fisik

Thermomechanical Analyzer (Shimadzu TMA-50) digunakan untuk mengevaluasi kestabilan panas. Film PBS dengan ukuran (5 x 2 x 0,1) mm³ dan berat 0,5 g ditempatkan pada sampel holder dan dipanaskan dari 25 °C sampai dengan 200 °C dalam atmosfer nitrogen dengan laju pemanasan yang tetap sebesar 10 °C/min.

Ketahanan panas dari sampel PBS diuji dengan metode creep test menggunakan burner. Lembaran PBS dengan ukuran (0,5 x 10 x 50) mm³ digantung dan diberi tekanan sebesar 0,23 MPa, deformasi dari sampel (dalam elongasi) diukur pada suhu berbeda selama 3 menit,

selanjutnya tekanan sebesar 0,21 MPa dihilangkan untuk memperkirakan penyusunan ulang sampel (proses *recovery*).

Sifat viskoelatis dinamis diukur menggunakan sebuah torsi pendulum tipe *viscoelastometer (Rhesca RD-1000AD)* pada frekuensi 0,2 Hz hingga 1 Hz dengan kisaran suhu dari -150 °C hingga 150 °C. Film sampel yang digunakan berukuran (100 x 10) mm² dengan ketebalan 0,5 mm.

Pengujian Biodegradasi

Pengujian kemampuan terdegradasi dengan *soil burial test* dilakukan di dalam bak plastik yang berukuran panjang 57 cm, lebar 17 cm dan tinggi 14 cm. Tanah yang digunakan terdiri dari campuran tanah permukaan, tanah humus dan lumpur kolam dengan perbandingan sedemikian hingga pH = 7 dan kelembabannya 40 %. Selanjutnya sampel potongan *dumbbell* dengan ketebalan 0,5 mm dipendam sedalam 3 cm dari permukaan tanah selama 1 bulan sampai dengan 8 bulan. Setelah mencapai waktu yang diinginkan, sampel diambil dari tanah dibersihkan dengan kertas tisu, dicuci dengan air destilasi dan dikeringkan di dalam oven pada suhu 40 °C sampai diperoleh berat konstan.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Perilaku Pengikatan Silang dari *PBS* yang Diiradiasi

Poly(butylene succinate) (PBS) adalah polimer yang dapat berikatan silang, sehingga bila diiradiasi dengan elektron yang dipancarkan dari akselerator maka berat molekulnya akan bertambah dan membentuk fraksi yang tidak larut (fraksi gel). Proses ini berpengaruh pada sifat mekanik, sifat fisik dan kimia polimer.

Pada Gambar 1 ditunjukkan fraksi gel yang terbentuk ketika *PBS* ditambah 1% berat monomer dan diiradiasi dengan dosis radiasi yang berbeda. Untuk *PBS* murni dan *PBS* yang dicampur dengan monomer 4G pada dosis 20 kGy belum terbentuk fraksi gel, artinya

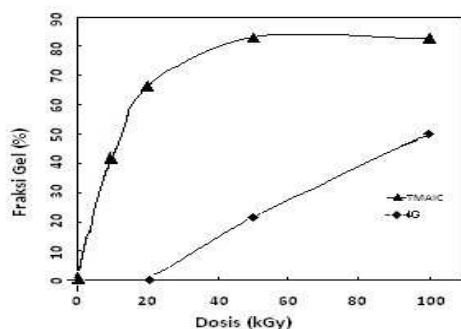
belum terjadi reaksi pengikatan silang pada polimer tersebut. Fraksi gel yang terbentuk dari *PBS* murni adalah 18,23% dan 22% untuk *PBS* yang dicampur dengan monomer 4G pada dosis iradiasi 50 kGy. Dari Gambar 1 juga memperlihatkan pengaruh penambahan monomer 4G terhadap pembentukan fraksi gel. Hal yang sama terjadinya perubahan fraksi gel yang signifikan jika *PBS* dicampur dengan monomer *TMAIC*. Pada dosis iradiasi 50 kGy, *PBS* yang dicampur dengan 1% *TMAIC* membentuk fraksi gel sebanyak 82,9% dan jumlah fraksi gelnya relatif konstan sampai dosis radiasi sebesar 100 kGy. Hal ini menunjukkan bahwa monomer *TMAIC* memberikan pengaruh yang sangat besar pada reaksi pengikatan silang *PBS* dibandingkan monomer 4G. Hal ini dikarenakan *TMAIC* mempunyai unit siklik yang lebih mudah membentuk ikatan silang tiga dimensi dengan menggunakan iradiasi dibandingkan alipatik polifungsional monomer.

Bahan polimer yang mengalami radiasi, reaksi dominan dan akhir reaksi sangat tergantung pada perpindahan energi yang tereksitasi, kekuatan rantai kimia dan pengaturan geometris molekul polimer tersebut [9]. Proses dominan dari dua proses yang terjadi berupa pengikatan silang dan degradasi [10].

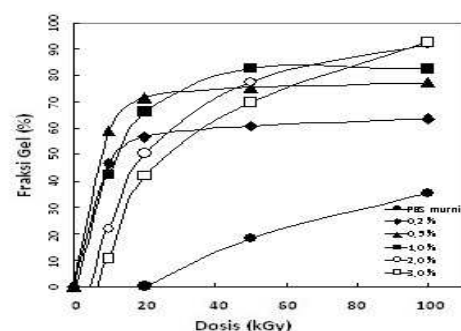
Gambar 2 memperlihatkan kandungan gel setelah *PBS* yang dicampur dengan *TMAIC* pada konsentrasi yang berbeda diiradiasi dengan dosis yang bervariasi.

Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa pada dosis radiasi 10 kGy dan 20 kGy, sampel dengan kandungan 0,2 %*TMAIC*, 0,5 %*TMAIC* dan 1 %*TMAIC* menghasilkan gel yang lebih banyak dibandingkan sampel dengan konsentrasi 2 %*TMAIC* dan 3 %*TMAIC*. Namun demikian pada dosis radiasi 100 kGy, sampel dengan kandungan 2 %*TMAIC* dan 3 %*TMAIC* membentuk gel yang lebih banyak dibandingkan penambahan 0,2 %*TMAIC*, 0,5 %*TMAIC* dan 1 %*TMAIC*. Hal ini mungkin disebabkan pada dosis iradiasi 10 kGy dan 20 kGy, *PBS* yang mengandung 2 %*TMAIC* dan 3 % *TMAIC* membentuk radikal yang jumlahnya tidak cukup untuk mendukung reaksi pengikatan silang diantara rantai polimer.

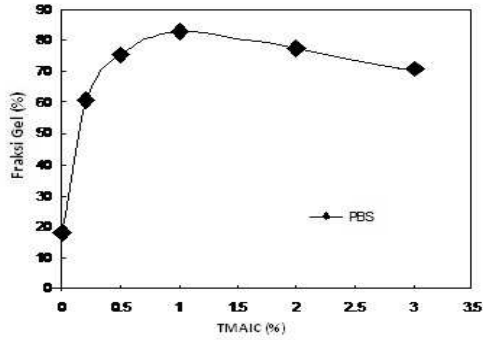
Radikal monomer yang terbentuk dan bereaksi dengan polimer hanya satu sisi saja. Sedangkan untuk



Gambar 1. Kurva fraksi gel (%) terhadap dosis iradiasi (kGy) dari *PBS* yang ditambah 1% berat monomer *TMAIC* dan 4G



Gambar 2. Kurva fraksi gel (%) terhadap dosis iradiasi (kGy) dari *PBS* yang ditambah monomer *TMAIC* dengan konsentrasi yang bervariasi



Gambar 3. Kurva fraksi gel (%) terhadap konsentrasi TMAIC (%) yang ditambahkan pada PBS yang diiradiasi dengan dosis 50 kGy

PBS dengan kandungan 2 %TMAIC dan 3 %TMAIC yang diiradiasi pada dosis 100 kGy, dihasilkan radikal monomer TMAIC yang jumlahnya cukup untuk bereaksi dengan polimer dan membentuk polimer dengan jaringan tiga dimensi. Fraksi gel yang terbentuk pada iradiasi PBS yang mengandung 0,2 %TMAIC, 0,5 %TMAIC dan 1 %TMAIC tidak berbeda secara signifikan di antara dosis radiasi 50 kGy dan 100 kGy. Hal ini membuktikan bahwa seluruh monomer yang ditambahkan telah digunakan untuk pembentukan ikatan silang ketika sampel diiradiasi dengan dosis 50 kGy.

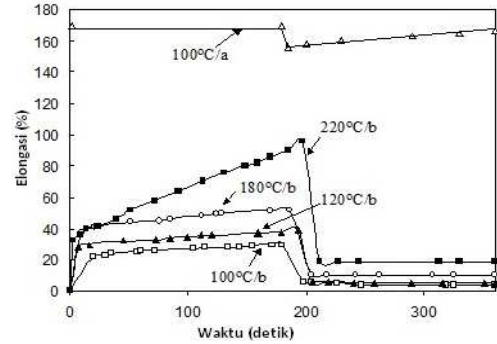
Pengaruh konsentrasi TMAIC dalam PBS terhadap pembentukan gel pada dosis iradiasi 50 kGy ditunjukkan pada Gambar 3. Terlihat bahwa sampel PBS yang mengandung 1%TMAIC menghasilkan fraksi gel yang tertinggi. Artinya kondisi optimum reaksi pengikatan silang PBS dicapai apabila jumlah monomer yang ditambahkan sebanyak 1% dan diiradiasi dengan dosis 50 kGy.

Kestabilan Panas PBS Pengikatan Silang

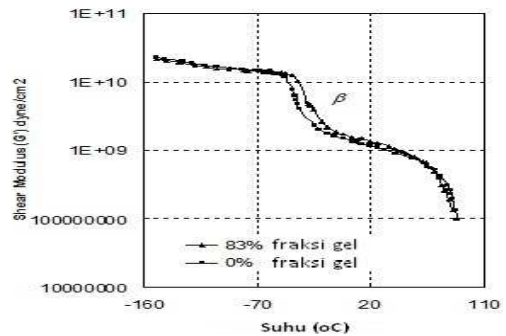
Creep Test

Ketahanan panas dari PBS hasil radiasi telah ditentukan dengan cara mengukur deformasi pada suhu berbeda di bawah suhu lelehnya. Hubungan diantara waktu dan deformasi (dalam elongasi) dari PBS dengan dan tanpa TMAIC ditunjukkan pada Gambar 4. Hasil yang diperoleh memperlihatkan bahwa pada 100 °C, PBS murni hasil iradiasi (dosis 50 kGy) mengalami deformasi yang secara signifikan lebih tinggi dibandingkan PBS yang mengandung 1%TMAIC.

Pada suhu 120 °C PBS murni hasil iradiasi langsung putus, sedangkan PBS yang mengandung TMAIC secara perlahan-lahan mengalami elongasi kemudian mengalami proses recovery setelah tekanan yang diberikan sebesar 0,21 MPa. Recovery sampel kemungkinan terjadi karena adanya penyusunan ulang bagian kristalin dalam sampel. Dari Gambar 4 juga dapat dilihat bahwa naiknya suhu akan meningkatkan deformasi (elongasi). PBS hasil iradiasi yang mengandung 1%TMAIC tidak putus pada suhu 220 °C sampai dengan akhir percobaan yang memakan waktu 6 menit).



Gambar 4. Creep test dari PBS pada dosis iradiasi 50 kGy, (a). PBS murni dan (b). PBS yang mengandung 1 %TMAIC



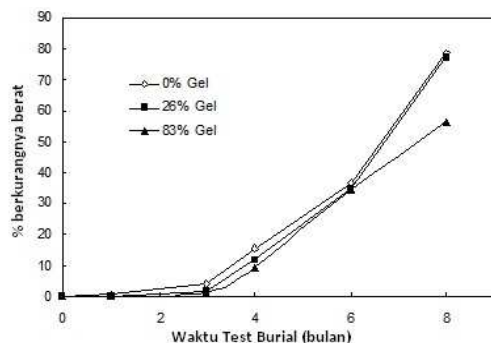
Gambar 5. Pengaruh suhu terhadap shear modulus (G') dari PBS hasil iradiasi yang mengandung 1%TMAIC (83 %gel) dan PBS murni.

Sifat Viscoelastik Dinamis

Perbedaan mekanisme deteriorasi diantara sampel PBS yang tidak berikatan silang dan PBS yang berikatan silang telah dipelajari. Efek pengikatan silang pada pergerakan molekul terungkap dengan pengukuran viscoelastik dari sampel polimer PBS semikristalin. Gambar 5 menunjukkan pengaruh suhu terhadap shear modulus (G') dari PBS hasil iradiasi yang mengandung 1 %TMAIC (83% gel) dan PBS murni. Pada suhu dibawah relaksasi β , perbedaan shear modulus dari sampel yang tidak berikatan silang dan sampel yang berikatan silang tidak signifikan. Daerah pemuluran β sampel yang berikatan silang bergeser ke suhu yang lebih tinggi dibandingkan sampel yang tidak berikatan silang. Peningkatan shear modulus pada daerah pemuluran β secara nyata dipengaruhi oleh derajat pengikatan silang.

Uji Biodegradasi

Uji soil burial adalah suatu metode standar untuk menguji kemampuan biodegradasi sampel polimer oleh bakteri di dalam tanah. Pengaruh kandungan gel terhadap kemampuan biodegradasi ditunjukkan pada Gambar 6. Dari data tersebut terlihat bahwa berkurangnya berat sampel sangat dipengaruhi oleh kandungan gel di dalam sampel. Beberapa faktor yang berpengaruh pada uji soil burial, seperti : suhu, kelembaban, pH, oksigen, konsentrasi dan jumlah



Gambar 6. Pengaruh kandungan gel terhadap kemampuan biodegradasi

mikro organisme aktif. Untuk mengetahui pengaruh faktor-faktor tersebut diatas tidak dilakukan dalam penelitian ini.

KESIMPULAN

Telah dilakukan reaksi pengikatan silang dengan metode radiasi pada sampel *Poly(butylene succinate-co-adipate)* (PBS) dengan penambahan monomer polifungsi *trimethyl isocyanurate* (TMAIC) dan *polyethyleneglycol dimethyl methacrylate* (4G). Monomer TMAIC memberikan pengaruh yang sangat besar pada reaksi pengikatan silang PBS dibanding monomer 4G, yang ditunjukkan oleh tingginya fraksi gel yang terbentuk setelah iradiasi. Kondisi optimum reaksi pengikatan silang diperoleh pada dosis iradiasi 50 kGy dan konsentrasi monomer 1 %TMAIC. Terbentuknya pengikatan silang dari PBS terbukti dapat meningkatkan

kestabilan panas. Kecepatan biodegradasi dari polimer yang dimodifikasi berkurang dengan bertambahnya fraksi gel, namun demikian polimer tersebut tetap dapat dibiodegradasi.

DAFTAR ACUAN

- [1]. TAKIYAMA, and T. FUJIMAKI, *Biodegradable Plastics and Polymers*, Amsterdam, Elsevier, (1994) 150
- [2]. N. YOSHIE, Y. AZUMA, M. SAKURAI, and Y. INOUE, *J. Appl. Sci.*, **56** (1995) 17
- [3]. F. YOSHII, D. DARWIS, H. MITOMO, and K. MAKUUCHI, *Radia. Phys. Chem.*, **57** (2000) 417-420
- [4]. K. BAHARI, H. MITOMO, T. ENJOJI, F. YOSHII, and K. MAKUUCHI, *Polym. Deg. Stab.*, **62** (1998) 551-557
- [5]. U. WITT, R.J. MULLER, J. AUGUSTA, H. WIDDECKE, and W. D. DECKWER, *Macromol. Chem. Phys.*, **195** (1994) 793
- [6]. U. WITT, R. J. MULLER, and W. D. DECKWER, *J. Macromol. Sci. Pure. Appl. Chem.*, **A32(4)** (1994) 851
- [7]. Y. TOKIWA, and T. SUZUKI, *J. Appl. Polym. Sci.*, **24** (1979) 1701
- [8]. Y. TOKIWA, and T. SUZUKI, *J. Appl. Polym. Sci.*, **26** (1981) 441
- [9]. A. MATSUMOTO, F. HIRAI, Y. SUMIYAMA, H. AOTA, Y. TAKAYAMA, A. KAMEYAMA, and T. NAKANISHI, *Eur. Polym. J.*, **35** (1999) 195-199
- [10]. A. CHARLESBY, *Rad. Phys. Chem.*, **59** (1981) 18