

Sintesis dan Karakterisasi Hidrogel Superabsorben Kitosan Poli(N-Vinilkaprolaktam) (Pnvcl) Dengan Metode Full Ipn (*Interpenetrating Polymer Network*)

Nadhras Wivanius¹, Emil Budianto¹

¹Departemen Kimia, Universitas Indonesia, Kampus UI Depok 16424

Email: nadhras.wivanius@gmail.com

Abstrak

Material polimer untuk menyusun hidrogel harus dapat mengembang (*swell*) dan mempertahankan fraksi air pada strukturnya, namun tidak larut dalam air. Polimer alami memiliki gugus fungsi yang dapat menjadi pusat aktif reaksi dimana dapat dilakukan modifikasi untuk menghasilkan suatu polimer dengan karakteristik yang lebih baik. Kitosan merupakan polimer alami yang memiliki kekuatan struktur yang kurang dibandingkan kemampuan mengembang. Sintesis hidrogel kitosan dengan metode full interpenetrating polymer network (IPN) dapat meningkatkan kekuatan struktur melalui ikat silang. Tahap pertama adalah sintesis jaringan polimer kitosan terikat silang asetaldehida. Tahap kedua adalah sintesis jaringan polimer PNVCL terikat silang N, N'-metilenbisakrilamida (MBA) melalui polimerisasi radikal bebas monomer NVCL dengan inisiator amonium persulfat (APS). Variasi waktu, rasio kitosan-PNVCL, konsentrasi agen pengikat silang, dan konsentrasi inisiator dipelajari untuk mengetahui kondisi optimum. Kondisi optimum diperoleh pada reaksi 2 jam dengan rasio kitosan/NVCL 90:10 (b/b %), konsentrasi MBA 0,5% b/v, dan konsentrasi APS 3% b/v. HSA kitosan-PNVCL memberikan rasio swelling 380,66% dan derajat ikat silang 60,85%. Karakterisasi HSA dilakukan dengan spektrofotometer Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), Differential Scanning Calorimetry (DSC), Thermogravimetric analysis (TGA), Scanning Electron Microscope (SEM), dan X-Ray Diffraction (XRD).

Abstract

Polymer material used for hydrogel should have capability to swell and to keep water molecules in its structure without solubilised in water. Natural polymers has functional groups which can perform as active sites in modification to produce polymer with better characteristic. Chitosan is a natural polymer which has good swelling ability but lack of structural strength. Synthesis of chitosan hydrogel by interpenetrating polymer network (IPN) will increase its strength through crosslinking. In this research, the first step of modification was the synthesis of chitosan polymer network crosslinked by acetaldehyde. The next step was the synthesis of PNVCL polymer network crosslinked by N,N-methylbisacrylamide (MBA) through free radical polymerization of NVCL monomer with ammonium persulfat (APS) as the initiator. Optimum reaction time, chitosan/PNVCL ratio (w/w %), concentration of crosslinker agent, and concentration of initiator had been observed. The optimum conditions were obtained as followed: 2 hours reaction, the ratio chitosan/PNVCL of 90:10 (w/w %), %-w MBA concentration of 0,5%, and APS concentration of 3%. The swelling ratio of the hydrogel was 380,66% while the crosslinking degree was 60,85%. Fourier transfor infrared spectroscopy (FTIR), Differential Scanning Calorimetry (DSC), Thermogravimetric analysis (TGA), Scanning Electron Microscope (SEM), and X-Ray diffraction (XRD) were used for the characterization of the hydrogel.

Keywords: Chitosan, hydrogel, interpenetrating polymer network (IPN), poly(N-vinylcaprolactam), superabsorben

PENDAHULUAN

Hidrogel merupakan jaringan polimer yang dapat mengabsorpsi sejumlah air tanpa melarutkan atau menghilangkan integritas struktur polimer tersebut (Byrne & Salian, 2008). Hidrogel mengandung jumlah air yang tinggi, mirip dengan jaringan alami pada makhluk hidup. Oleh karena itu hidrogel diaplikasikan sebagai biomaterial. Hidrogel digunakan pada bidang medis, pertanian, penyiapan makanan, dan industri kosmeti (Kozanoglu *et al.*, 2011).

Material polimer untuk menyusun hidrogel harus dapat mengembang (swell) dan mempertahankan fraksi air pada strukturnya, namun tidak larut dalam air. Baik material alami maupun sintetik telah banyak digunakan untuk mensintesis hidrogel (Dragan *et al.*, 2012; Matricardi *et al.*, 2013).

Kitosan merupakan suatu polisakarida hasil deasetilasi kitin yang dapat membentuk hidrogel superabsorben melalui ikatan silang baik secara kovalen maupun nonkovalen. Adanya gugus amino pada kitosan menyebabkan molekul ini dapat dimodifikasi untuk menghasilkan sifat yang diinginkan. Selain itu, gugus hidroksil pada kitosan juga dapat mempengaruhi modifikasi kimia yang sesuai untuk meningkatkan kelarutan (Sugita *et al.*, 2009).

Pembentukan ikatan silang pada kitosan dapat meningkatkan karakteristik kitosan seperti kelarutan dalam air, atau pelarut organik,

efek bakteriostatik, kemampuan pengkelat dan pengkompleks. Kitosan dapat menyerap enzim, polisakarida anionik, dan ion logam. Kitosan juga digunakan pada proses pemisahan dan pemurnian (Liao *et al.*, 2004). Rohindra, *et al* (2004) mensintesis hidrogel kitosan dengan glutaraldehid sebagai agen pengikat silang. Sedangkan sintesis hidrogel kitosan terikat silang formaldehid dilakukan oleh Singh, *et al* (2006). Modifikasi dengan polimer lain pada pembuatan hidrogel kitosan juga dapat dilakukan, seperti oleh Sadeghi, *et al* (2011) yang mensintesis hidrogel dengan melakukan grafting pada kitosan dengan menggunakan monomer akrilonitril dan asam akrilat serta inisiator amonium persulfat (APS) dan N, N'-metilenbisakrilamida (MBA) sebagai agen pengikat silang. Afriani (2013) mensintesis hidrogel dengan metode IPN menggunakan kitosan dan monomer N-vinilpirolidon (NVP). Dari penelitian tersebut diketahui bahwa metode full IPN lebih baik dalam meningkatkan derajat ikat silang dibandingkan metode semi IPN. Namun rasio swelling yang dihasilkan relatif rendah.

Pada penelitian ini dilakukan sintesis hidrogel superabsorben (HSA) menggunakan kitosan sebagai polimer penyusunnya. Monomer yang akan digunakan adalah poli(N-vinilkaprolaktam), PNVCL. Metode Interpenetrating Polymer Network (IPN) digunakan dalam sintesis hidrogel. N,N'-metilenbisakrilamida (MBA) digunakan untuk mengikat silang NVCL.

METODE

Sintesis hidrogel superabsorben kitosan-PNVCL

Sintesis hidrogel superabsorben dilakukan dengan prosedur seperti yang dilaporkan Afriani (2013). Sebanyak 2,0 gram kitosan dilarutkan dalam 90 mL asam asetat 1% (v/v). Larutan kitosan didiamkan selama semalam disertai pengadukan pada temperatur ruang. Setelah homogen, ditambahkan 2% (b/b) asetaldehida 0.1 M dan direaksikan selama 3 jam dengan pengadukan menggunakan stirrer pada temperatur ruang.

Larutan kitosan ditempatkan dalam *oil bath* pada temperatur 70°C, dihubungkan dengan kondensor dan dialirkan gas nitrogen (N₂)

untuk menghilangkan oksigen (O₂). Monomer NVCL ditambahkan ke dalam larutan kitosan dan dihomogenkan. Kemudian inisiator APS (yang telah dilarutkan dalam 1 mL aquabides) ditambahkan dan diaduk dengan stirrer selama 10 menit pada temperatur 70°C. Kemudian dilanjutkan dengan penambahan MBA (yang telah dilarutkan dalam 1 mL aquabides) disertai pengadukan menggunakan stirrer di bawah atmosfer nitrogen. Hidrogel yang terbentuk dicuci dengan aquabides dan dilakukan filtrasi. Hidrogel dicetak dengan metode casting dalam wadah pencetak dan dikeringkan dalam oven selama 48 jam pada temperatur 60°C. Hidrogel disimpan dalam desikator sampai digunakan untuk karakterisasi. Variasi kondisi penelitian yang dilakukan dapat dilihat dalam tabel berikut.

Tabel 1. Variasi waktu reaksi sintesis hidrogel kitosan-PNVCL

Rasio kitosan-NVCL (b/b %)	APS (b/b %)	MBA (b/b %)	Waktu (jam)
70:30	1	2	1
			2
			3
			4

Tabel 2. Variasi konsentrasi kitosan-PNVCL

Rasio kitosan-NVCL (b/b %)	APS (b/b %)	MBA (b/b %)	Waktu (jam)
90:10	1	2	optimum
70:30			
60:40			
50:50			

Dari percobaan ini akan diketahui waktu optimum reaksi polimerisasi melalui uji *swelling* dan derajat ikat silang. Selanjutnya dilakukan variasi rasio kitosan-NVCL pada waktu optimum.

Selanjutnya dilakukan variasi konsentrasi agen pengikat silang pada waktu dan rasio kitosan-NVCL optimum. Kemudian dilakukan variasi konsentrasi inisiator pada waktu, rasio kitosan-NVCL, dan konsentrasi MBA optimum.

Tabel 3. Variasi konsentrasi agen pengikatsilang MBA

Rasio kitosan-NVCL (b/b %)	APS (b/b %)	MBA (b/b %)	Waktu (jam)
Optimum	1	0,5	Optimum
		1,0	
		1,5	
		2,0	
		2,5	

Tabel 4. Variasi konsentrasi inisiator APS

Rasio kitosan-NVCL (b/b %)	APS (b/b %)	MBA (b/b %)	Waktu (jam)
Optimum	0,5	Optimum	Optimum
	1		
	2		
	3		

Penentuan derajat ikat silang

Derajat ikat silang ditentukan dengan cara ekstraksi. Hidrogel direndam ke dalam asam asetat 1% (v/v) selama 24 jam. Setelah perendaman, hidrogel dikeringkan dengan oven pada temperatur 60 °C. Selanjutnya, berat kering sebelum perendaman dan berat kering setelah perendaman ditentukan secara gravimetri. Persen derajat ikat silang (*degree of crosslinking*) dapat ditentukan dengan:

$$\text{Derajat ikat silang (\%)} = \frac{W_a}{W_b} \times 100 \%$$

W_a adalah berat hidrogel kering setelah perendaman dan W_b adalah berat hidrogel kering sebelum perendaman.

Penentuan rasio *swelling*

Pengukuran rasio pengembangan (*swelling*) dengan cara perendaman hidrogel ke dalam aquabides selama 30 menit pada temperatur ruang. Berat hidrogel kering dan mengembang ditentukan dengan metode gravimetri. Sebelum menimbang hidrogel yang mengembang, dilakukan penghilangan sisa-sisa air pada permukaan hidrogel dengan

menggunakan kertas saring yang ditempelkan pada permukaan hidrogel (proses *blotting*). Persen rasio *swelling* ditentukan dengan:

$$\text{Rasio } swelling (\%) = \frac{W_s - W_d}{W_d} \times 100\%$$

W_s adalah berat hidrogel saat mengembang (*swollen*) dan W_d adalah berat hidrogel kering (*dry*) sebelum *swelling*.

Karakterisasi hidrogel

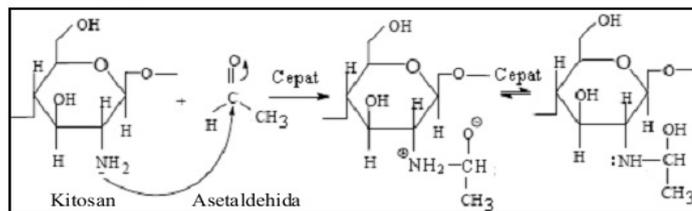
Hidrogel dikarakterisasi dengan menggunakan FTIR ATR, DSC, TGA, SEM, dan XRD.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Mekanisme reaksi ikat silang kitosan-asetaldehida

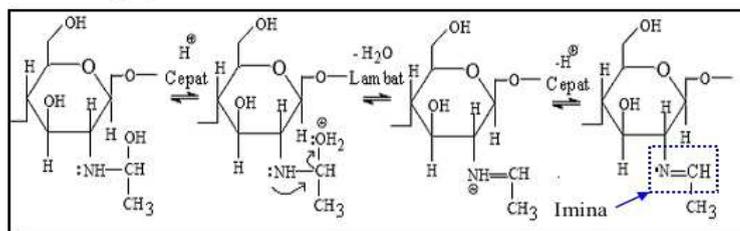
Pada sintesis tahap pertama, terbentuk jaringan polimer kitosan melalui reaksi ikat silang antara gugus amina kitosan dengan gugus karbonil asetaldehida. Pembentukan ikatan silang mengikuti mekanisme pembentukan basa *schiff* (Singh *et al.*, 2006) melalui reaksi adisi eliminasi. Adisi oleh gugus amina pada kitosan sebagai nukleofil. Selanjutnya terjadi reaksi eliminasi. Tahap ini menghasilkan ikatan imina antara atom nitrogen pada gugus amina kitosan dengan atom karbon dari gugus karbonil asetaldehida.

Tahap 1, adisi:



Gambar 1. Reaksi adisi pembentukan basa *Schiff*

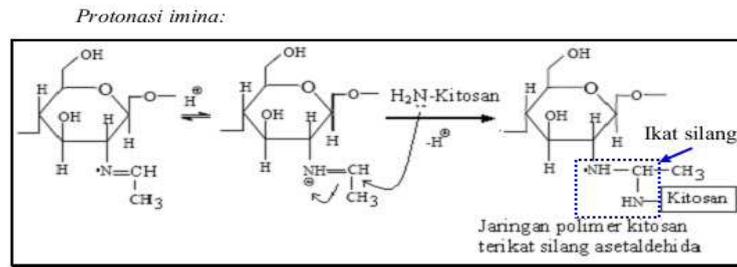
Tahap 2, eliminasi:



Gambar 2. Reaksi eliminasi pada pembentukan basa *Schiff*

Ikatan silang kitosan-asetaldehida terbentuk melalui tahap protonasi imina yang disebabkan suasana asam. Protonasi terjadi pada atom nitrogen sehingga pergeseran elektron dari ikatan rangkap ke atom nitrogen yang terprotonasi dapat terjadi. Hal ini

menyebabkan karbon yang berikatan imina dengan nitrogen cenderung bermuatan positif parsial. Karbon ini yang menjadi pusat reaksi ikat silang dengan gugus amina bebas dari rantai kitosan lainnya.



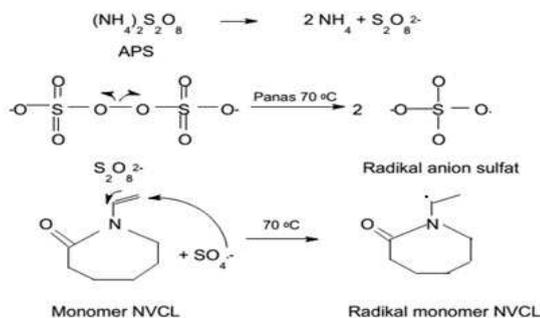
Gambar 3. Reaksi protonasi imina pada pembentukan hidrogel

Mekanisme reaksi ikat silang PNVCL-MBA

Reaksi ini merupakan reaksi polimerisasi radikal bebas monomer NVCL dengan adanya kitosan yang sudah terikat silang. Tahapan reaksi polimerisasi radikal bebas terdiri dari reaksi inisiasi, propagasi, dan terminasi.

Tahap inisiasi

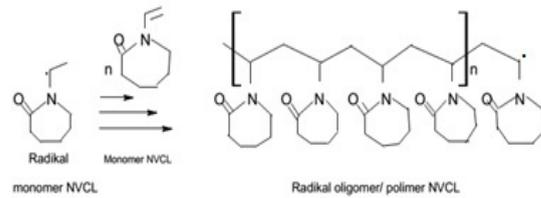
Tahap reaksi polimerisasi radikal bebas diawali dengan proses inisiasi oleh amonium persulfat (APS). Pada suhu 70 °C, APS akan mengalami pemutusan ikatan secara homolitik dan menghasilkan radikal anion sulfat. Radikal anion ini mengadisi ikatan rangkap pada monomer. Akibatnya, radikal monomer NVCL terbentuk.



Gambar 4. Mekanisme reaksi inisiasi

Tahap propagasi

Pada tahap propagasi, radikal monomer akan mengadisi monomer lainnya sehingga terbentuk oligomer atau polimer. Kemudian terjadi adisi berantai radikal oligomer atau polimer ke monomer yang masih tersedia.



Gambar 5. Mekanisme reaksi propagasi

Reaksi pembentukan ikatan silang terjadi setelah tahap ini. Pada agen pengikat silang MBA terdapat gugus olefin. Radikal oligomer atau polimer mengadisi ikatan rangkap pada salah satu gugus olefin MBA, menghasilkan radikal oligomer atau polimer yang telah terikat silang MBA. Radikal ini akan mengadisi gugus olefin MBA lainnya sehingga jaringan polimer terbentuk.

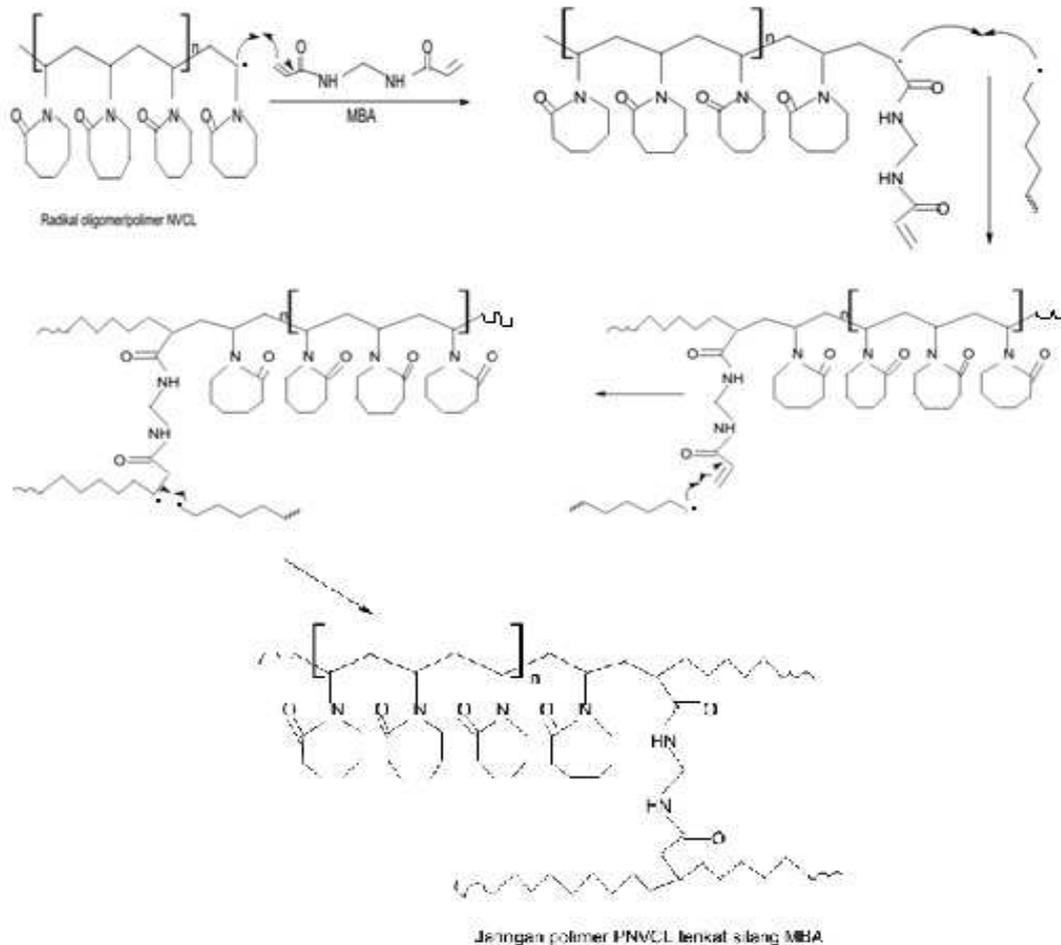
Tahap terminasi

Tahap terminasi merupakan tahap akhir reaksi polimerisasi. Reaksi propagasi akan berhenti ketika jumlah monomernya telah

habis bereaksi atau terjadi reaksi lain yang menghentikannya. Pada tahap terminasi, dua buah polimer radikal akan bergabung atau terjadi transfer atom hidrogen dari satu ujung ke ujung lainnya (disproporsionasi).

Mekanisme pembentukan jaringan IPN

Kitosan terikat silang asetaldehid ditambahkan pada reaksi pembentukan jaringan polimer PNVCL terikat silang MBA agar terbentuk belitan antar rantai

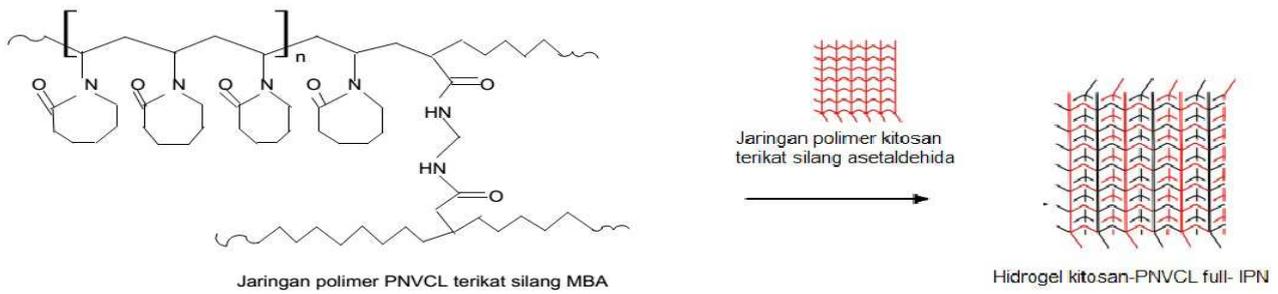


Gambar 6. Mekanisme reaksi terminasi

polimer PNVCL yang tumbuh dengan jaringan polimer kitosan. Jaringan polimer inilah yang disebut sebagai jaringan IPN. Ikatan silang kitosan-asetaldehid dan PNVCL-MBA merupakan suatu ikatan kimia. Interaksi kedua jaringan polimer tersebut merupakan interaksi fisika melalui ikatan hidrogen.

Analisis FTIR

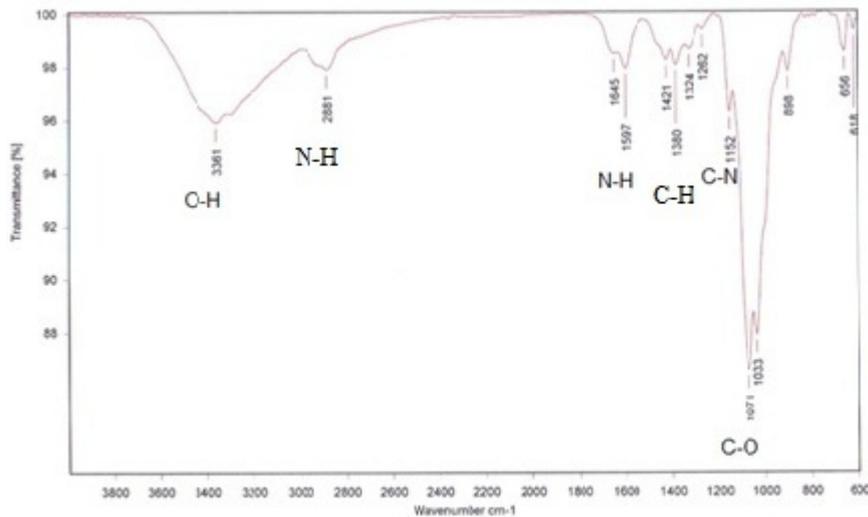
Pada spektrum FTIR kitosan, terdapat puncak serapan pada 3361 cm^{-1} yang menunjukkan adanya *stretching* gugus hidroksi (O-H). Hal ini merupakan karakteristik utama dari struktur kitosan. Selain itu terdapat N-H *stretching* pada



Gambar 7. Mekanisme pembentukan jaringan kitosan dengan jaringan PNVCCL dengan metode *full-IPN*

2881 cm^{-1} yang berasal dari garam amina. Garam amina diperoleh dari pelarutan kitosan dengan asam asetat yang menyebabkan gugus NH_2 pada kitosan menjadi terprotonasi. Pada 1597 cm^{-1} merupakan vibrasi tekuk N-H. Puncak tajam diperoleh pada 1071 cm^{-1} yang menunjukkan *stretching* O-H dari gugus hidroksi.

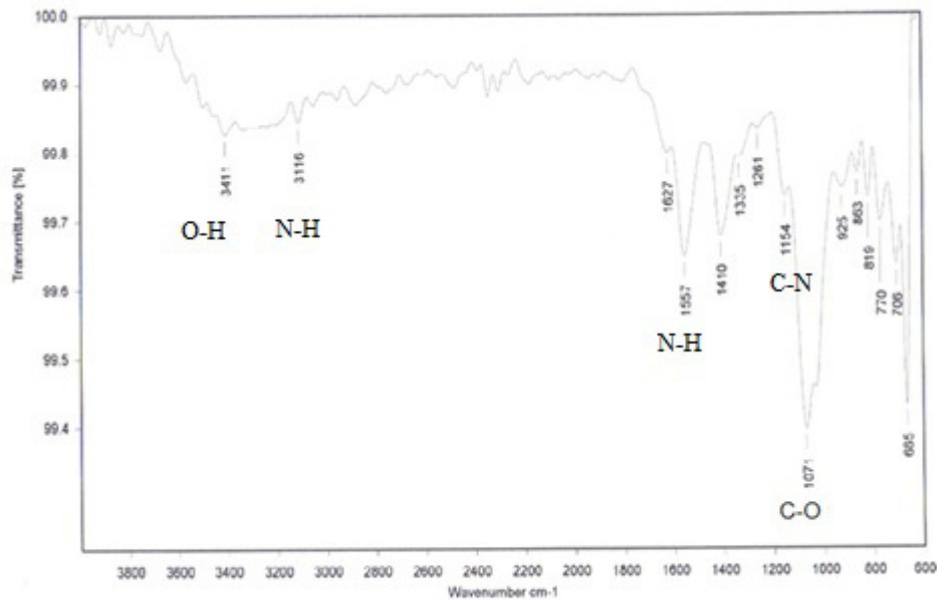
Pada spektrum kitosan terikat silang asetaldehida, terlihat pergeseran puncak hidroksi ke bilangan gelombang lebih besar yaitu 3411 cm^{-1} . Serapan yang dihasilkan lebih lebar. Selain itu, vibrasi N-H bergeser menjadi 3116 cm^{-1} . Pergeseran menunjukkan adanya interaksi melalui ikatan hidrogen antara kitosan-asetaldehida. Interaksi terjadi pada gugus amina primer kitosan dengan asetaldehida.



Gambar 8. Spektrum FTIR hidrogel kitosan

Puncak serapan ditemukan pada bilangan lebih kecil pada spektrum kitosan-PNVCL. Walaupun PNVCCL dan kitosan masing-masing telah membentuk jaringan polimer berikatan silang, interaksi melalui ikatan hidrogen

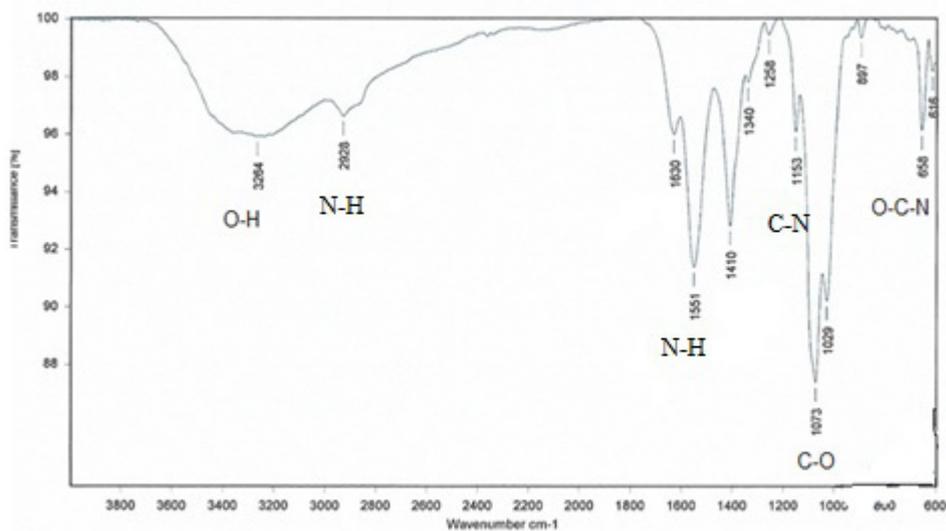
masih dapat terjadi. Sebuah puncak tajam diamati pada 658 cm^{-1} yang menunjukkan ikatan O-C-N. Ikatan ini berasal dari jaringan polimer PNVCCL terikat silang MBA.



Gambar 9. Spektrum FTIR hidrogel kitosan terikat silang asetaldehida

Serapan karbonil terlihat pada bilangan gelombang 1627 cm^{-1} untuk kitosan-asetaldehida dan 1630 cm^{-1} untuk kitosan-PNVCL. Terjadi pergeseran bilangan gelombang yang dapat disebabkan oleh meningkatnya jumlah karbonil.

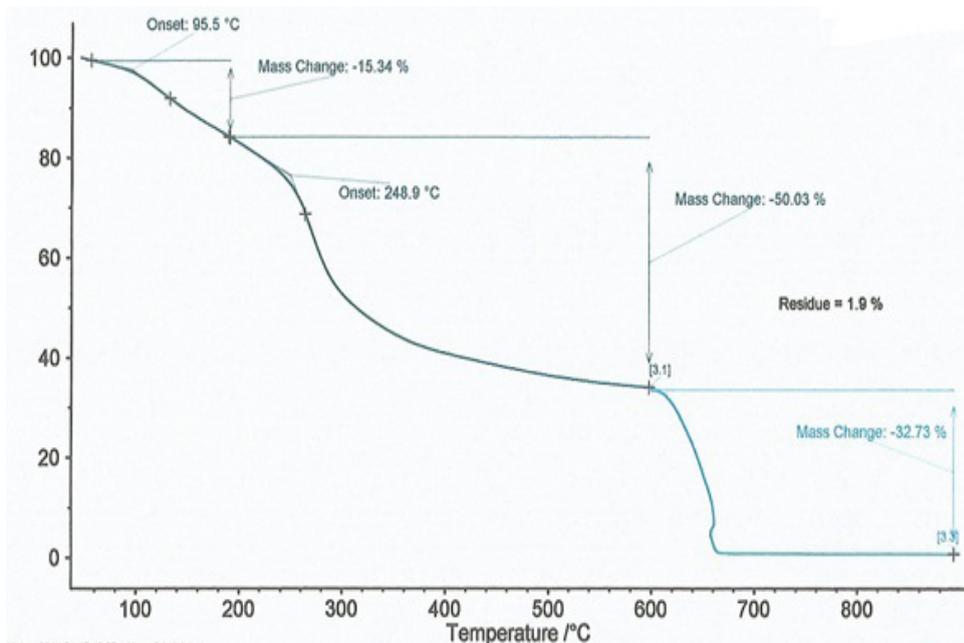
Puncak karakteristik NVCL pada 1659 cm^{-1} , 3102 cm^{-1} , dan 994 cm^{-1} yang menunjukkan ikatan alkena. Pada spektrum hidrogel kitosan-PNVCL tidak ditemukan serapan pada bilangan gelombang ini. Hal ini mengindikasikan ikatan $\text{C}=\text{C}$ pada NVCL telah mengalami adisi dilanjutkan polimerisasi dan gugus vinil menjadi rantai jenuh.



Gambar 10. Spektrum FTIR hidrogel kitosan-PNVCL *full-IPN*

Analisis TGA

Dari termogram TGA diketahui bahwa hidrogel kitosan-PNVCL mengalami tiga tahap perubahan massa. Tahap pertama terjadi pada suhu 95,5 °C yang menunjukkan terjadi penguapan air dan sisa pelarut yang masih tertinggal. Tahap kedua pada suhu 248,9 °C. Pada saat ini terjadi dehidrasi cincin sakarida dan diikuti dekomposisi rantai *backbone* kitosan. Perubahan massa pada tahap ketiga menunjukkan komposisi karbon pirolisis.



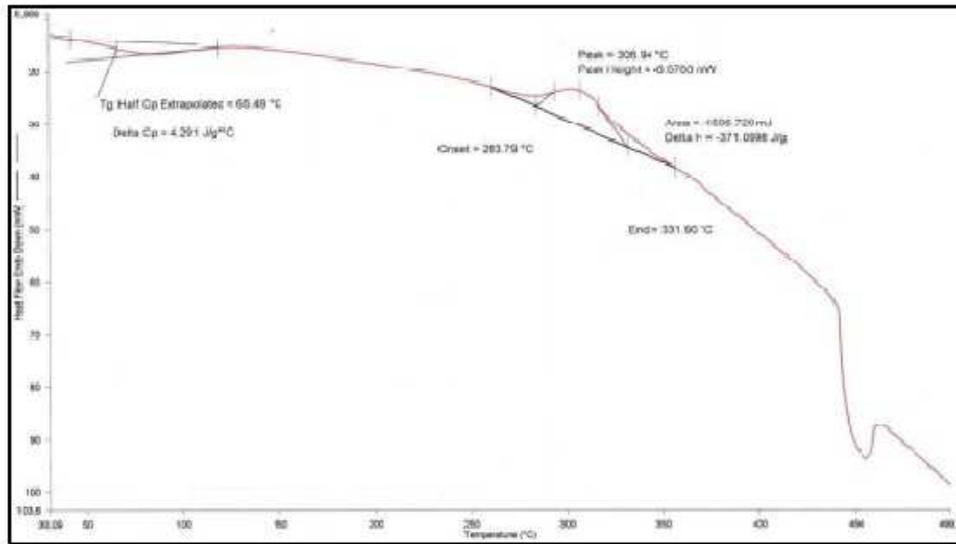
Gambar 11. Termogram TGA kitosan-PNVCL

Pada termogram DSC hidrogel kitosan-PNVCL, diketahui bahwa terjadi perubahan pada nilai Tg menjadi 94,73 °C dan puncak eksoterm menjadi 278,20 °C. Kenaikan nilai Tg disebabkan telah terbentuknya belitan antar jaringan polimer kitosan dengan jaringan polimer PNVCL. Hal ini mengurangi

Analisis DSC

Pada termogram kitosan diperoleh nilai *glass transition temperature* (Tg) sebesar 65,49 °C serta puncak eksoterm pada suhu 306,94 °C. Pada termogram DSC kitosan terikat silang asetaldehida, terlihat puncak pada 93,22 °C yang menunjukkan nilai Tg. Puncak melebar disebabkan karena faktor kelembaban sampel. Puncak eksoterm pada 278,90 °C menunjukkan suhu dekomposisi sampel kitosan. Dibandingkan dengan nilai Tg kitosan, diketahui bahwa nilai Tg kitosan terikat silang asetaldehida meningkat. Kenaikan nilai Tg menunjukkan peningkatan kekuatan mekanik.

fleksibilitas daerah amorf hidrogel. Semakin banyak monomer yang ditambahkan, suhu dekomposisi akan semakin rendah. Hal ini dapat disebabkan oleh meningkatnya ikatan hidrogen antara gugus amina atau gugus hidroksi kitosan dengan gugus karbonil dari PNVCL. Akibatnya, unit amina kitosan yang



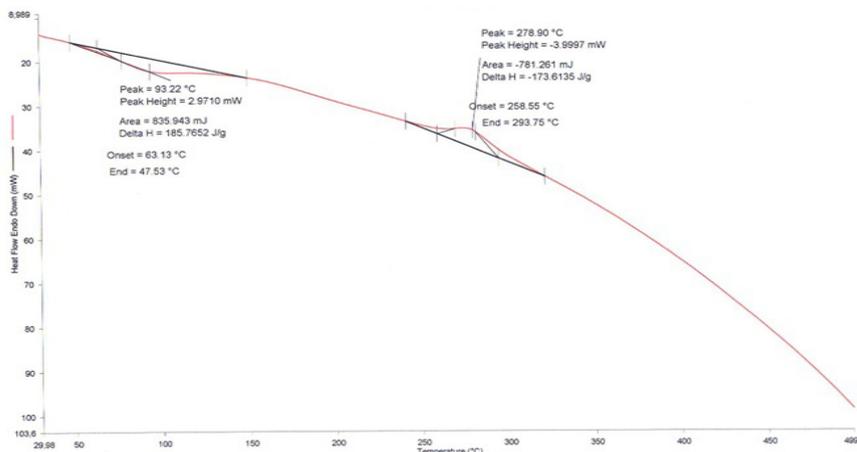
Gambar 12. Termogram DSC kitosan

mengalami dekomposisi menjadi berkurang. Peristiwa ini menyebabkan suhu degradasi kimia bergeser dari 306,94 °C (kitosan) menjadi 278,20 °C (kitosan-PNVCL).

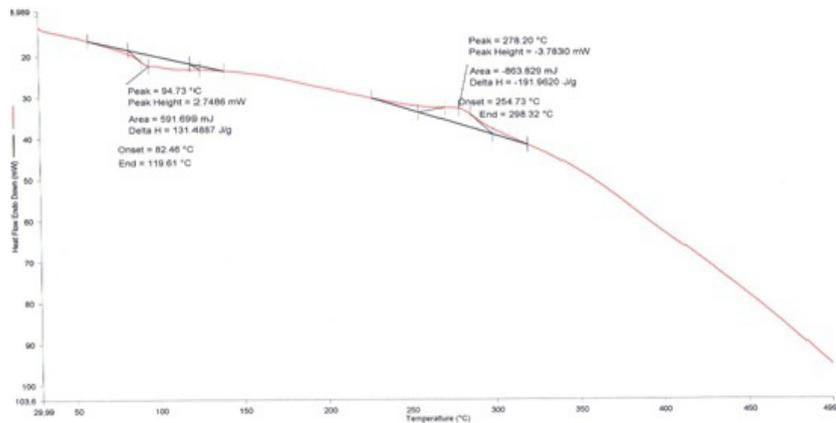
Pengaruh waktu reaksi terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

Reaksi sintesis pada waktu 1 jam, rasio *swelling* 78,32%, sedangkan pada waktu 2 jam rasio *swelling* meningkat diiringi kenaikan derajat ikat silang. Hal ini berkaitan dengan terbentuknya struktur

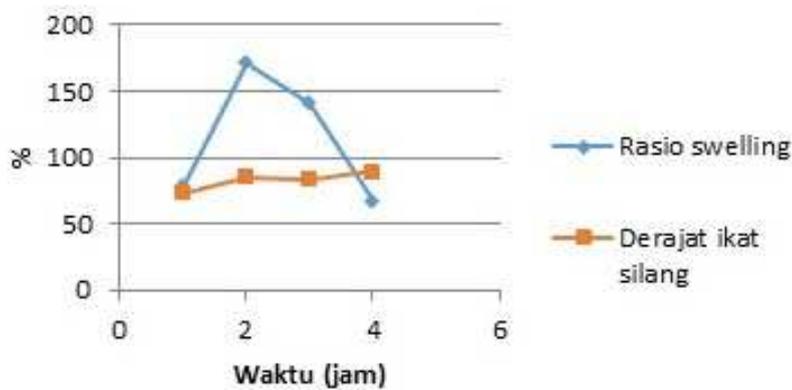
polimer yang lebih teratur selama reaksi. Akibatnya, terdapat ruang yang cukup untuk dapat bereaksi dengan air. Dari variasi ini diketahui bahwa waktu untuk menghasilkan rasio *swelling* yang tinggi adalah 2 jam, setelah itu menurun pada waktu reaksi lebih lama. Hal ini karena peningkatan derajat ikat silang yang menyebabkan struktur hidrogel lebih kaku sehingga kemampuan absorpsi menurun. Waktu optimum reaksi adalah 2 jam.



Gambar 13. Termogram DSC kitosan terikat silang asetaldehida



Gambar 14. Termogram DSC kitosan-PNVCL *full-IPN*



Gambar 15. Grafik pengaruh waktu reaksi terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

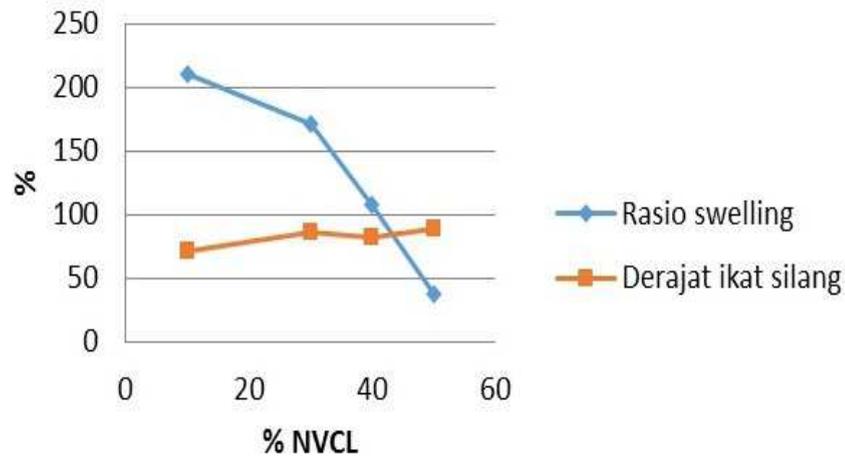
Pengaruh rasio monomer terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

Semakin banyak monomer NVCL yang ditambahkan dalam reaksi, PNVCL yang dihasilkan akan bertambah pula. PNVCL yang terikatsilang dengan MBA akan semakin banyak. Akibatnya, kemampuan hidrogel dalam menyerap medium cair akan terpengaruhi. Dari grafik terlihat terjadi penurunan nilai rasio *swelling* kitosan seiring penambahan konsentrasi PNVCL. Sebaliknya, derajat ikat silang hidrogel meningkat. Rasio *swelling* hidrogel dengan

rasio kitosan:NVCL= 90:10 lebih tinggi dan dijadikan sebagai kondisi optimum untuk reaksi berikutnya.

Pengaruh konsentrasi MBA terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

Dari Gambar 17, ditunjukkan bahwa nilai rasio *swelling* menurun ketika konsentrasi MBA yang ditambahkan meningkat. Sebaliknya, nilai derajat ikat silang semakin tinggi. Semakin tinggi konsentrasi MBA yang ditambahkan, kemungkinan reaksi antara radikal oligomer dengan MBA semakin tinggi.

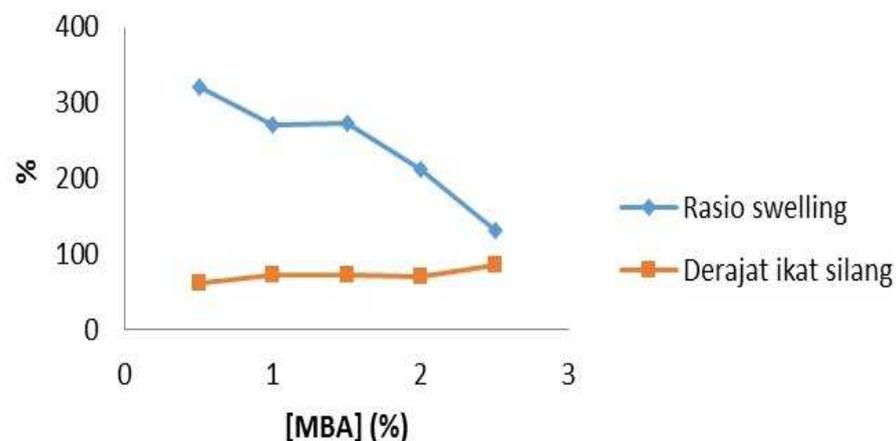


Gambar 16. Grafik pengaruh penambahan monomer NVCL terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

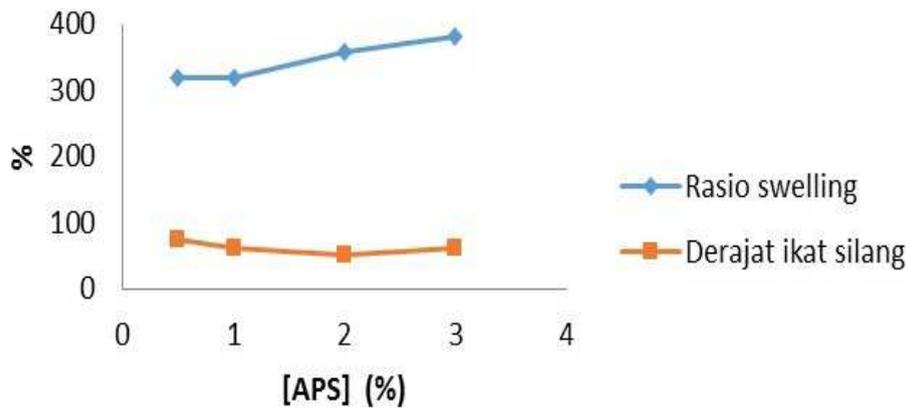
Hal ini menyebabkan ikat silang semakin banyak terjadi dan pembentukan jaringan akan bertambah. Kondisi optimum diperoleh pada penambahan MBA 0,5% yang menghasilkan nilai rasio *swelling* 319,71% dan derajat ikat silang 61%. Nilai rasio *swelling* lebih tinggi dari percobaan sebelumnya yakni hidrogel kitosan-PNVCL dengan MBA 2%. Derajat ikat silang menurun namun masih lebih baik daripada hidrogel kitosan.

Pengaruh konsentrasi inisiator APS terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

Hidrogel dengan penambahan inisiator APS 3% memiliki rasio *swelling* optimum dengan derajat ikat silangnya juga cukup tinggi. Semakin banyak inisiator yang ditambahkan, radikal akan banyak terbentuk dan indeks polidispersitas polimer yang dihasilkan besar. Hal ini dapat menyebabkan ketidakhomogenan pada hidrogel.

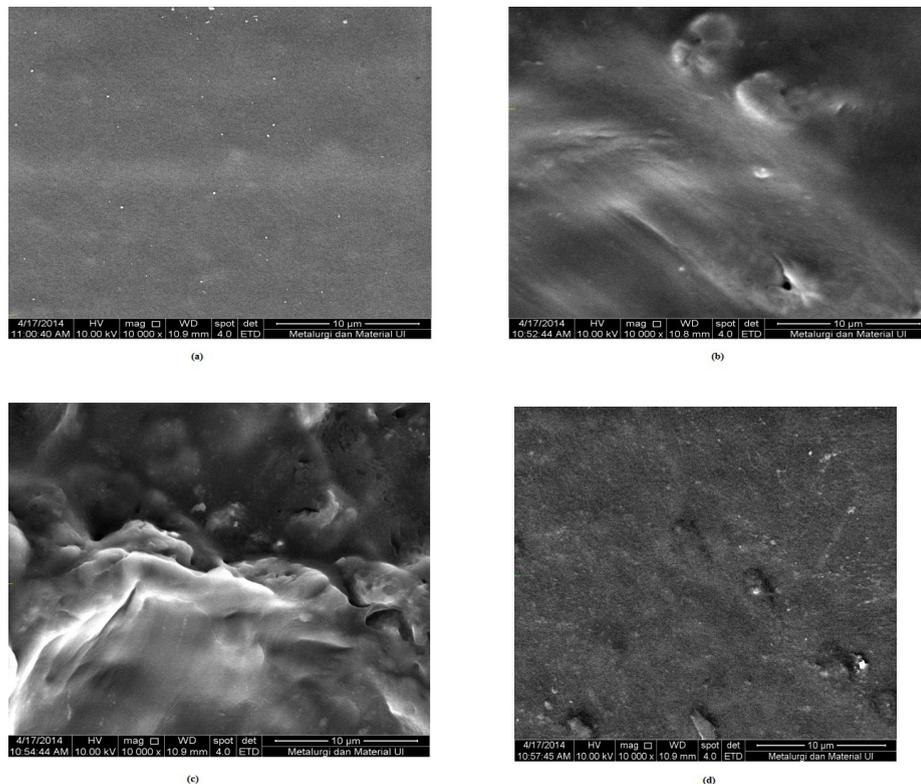


Gambar 17. Grafik pengaruh konsentrasi MBA terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang



Gambar 18. Grafik pengaruh konsentrasi inisiator APS terhadap rasio *Swelling* dan derajat ikat silang

Analisis SEM



Gambar 19. Morfologi permukaan hasil karakterisasi SEM hidrogel kitosan-PNVCL pada perbesaran 10000x (a) Inisiator APS 0,5% (b) APS 1% (c) APS 2% (d) APS 3%

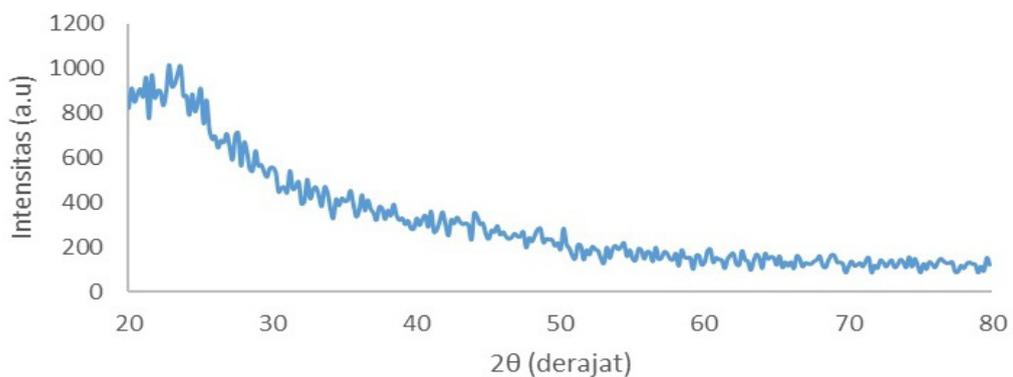
Secara umum terlihat bahwa morfologi SEM hidrogel kitosan-PNVCL *full* IPN memiliki permukaan kasar dan kerapatan besar. Hal ini menunjukkan jaringan polimer yang terbentuk akan saling berbelit dan berinteraksi. Bentuk yang tidak beraturan memberikan ruang

berpori sehingga absorpsi dapat terjadi. Permukaan yang heterogen menunjukkan terdapat daerah yang mengalami interaksi antar rantai kitosan serta terdapat pula daerah yang tidak terbentuk interaksi dari rantai kitosan tersebut.

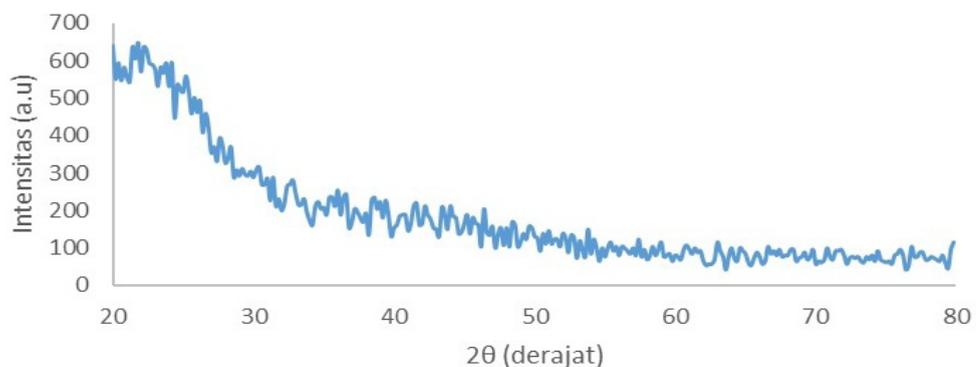
Analisis XRD

Dari hasil XRD, diketahui bahwa pada $2\theta = 20^\circ$ (yang menunjukkan puncak karakteristik kitosan), sampel HSA APS 1% dan 3% memiliki intensitas masing-masing 826.25 dan 640.92. Hal ini menunjukkan HSA APS 1% memiliki intensitas yang jauh lebih tinggi. Diperkirakan kristalinitas kitosan meningkat sehingga jumlah air yang dapat diabsorpsi pun berkurang. Hal ini berkaitan dengan struktur polimer yang lebih teratur menyebabkan molekul air lebih sukar menyusupi. Hal ini juga ditunjukkan oleh derajat ikat silang HSA 1% yang lebih tinggi.

HSA APS 3% memiliki *swelling* optimum namun derajat ikat silangnya cukup tinggi. Nilai intensitas HSA APS 3% menunjukkan sampel ini cukup kristalin meskipun nilai intensitasnya tidak setinggi HSA APS 1%. Hal ini sebanding dengan derajat ikat silang HSA APS 3% yang sedikit lebih rendah daripada HSA APS 1%. Rasio *swelling* yang tinggi disebabkan absorpsi terjadi bukan hanya karena transfer fasa pada membran namun juga karena transfer difusi melalui keruahan matriks polimer.



Gambar 20. Spektrum XRD HSA kitosan-PNVCL dengan APS 1%



Gambar 21. Spektrum XRD HSA kitosan-PNVCL dengan APS 3%

Perbandingan rasio *Swelling* dan derajat ikat silang antara hidrogel kitosan, hidrogel kitosan-asetaldehida, dan hidrogel kitosan-PNVCL

Penambahan monomer NVCL memperbaiki kekuatan struktur. Adanya jaringan berbelit IPN menyebabkan struktur lebih kaku. Ikat silang kovalen membentuk jaringan polimer yang permanen. Hal ini menyebabkan

derajat ikat silang meningkat, berbanding terbalik dengan penurunan kemampuan *swelling*. Kekuatan struktur terlihat pada proses absorpsi dimana hidrogel tidak pecah meskipun telah menyerap air. Sintesis hidrogel dengan menggunakan metode *full* IPN meningkatkan kekuatan struktur hidrogel dengan rasio *swelling* relatif tinggi.

Tabel 5. Rasio *Swelling* dan derajat ikat silang berbagai hidrogel

Jenis Hidrogel	Rasio Swelling (%)	Derajat Ikat Silang (%)
Kitosan	1057,03	44,12
Kitosan-asetaldehida	485,22	56,60
Kitosan-PNVCL	380,66	60,85

KESIMPULAN

Kondisi optimum diperoleh melalui reaksi sintesis hidrogel superabsorben kitosan-PNVCL menggunakan metode *full* IPN dengan waktu reaksi 2 jam, rasio kitosan:NVCL = 90:10 (b/b %), konsentrasi agen pengikat silang MBA 0.5%, dan konsentrasi inisiator APS 3%. Nilai rasio *swelling* hidrogel ini adalah 380,67% dan derajat ikat silang 60,85%. Kekuatan struktur kitosan dapat ditingkatkan dengan melakukan polimerisasi menggunakan metode *full* IPN. Jaringan polimer terikat silang asetaldehida akan terbelit dengan jaringan PNVCL terikat silang MBA sehingga struktur lebih kaku dan derajat ikat silang meningkat.

DAFTAR ACUAN

- Afriani, K. (2013). *Sintesis dan karakterisasi hidrogel superabsorben kitosan-poli(N-vinil-2-pirolidon) (PVP) dengan metode IPN (Interpenetrating Polymer Network)*. Depok: Universitas Indonesia
- Ahmed, E. M. (2013). Hydrogel: Preparation, characterization, and applications. *Journal of Advanced Research*
- Berger, J.; Reist, M.; & Mayer, J. (2004). Structure and interactions in covalently and ionically crosslinked. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 19-34
- Byrne, M.; & Salian, V. (2008). Molecular imprinting within hydrogels.

- International Journal of Pharmacy* , 188-212
- Dragan, E. S.;Perju, M. M.;& Dinu, M. V. (2012). Preparation and characterization of IPN composite hydrogel based on polyacrylamide and chitosan and their interaction with ionic dyes. *Carbohydrate Polymers*, 270-281
- Kozanoglu, S.;Ozdemir, T.;& Usanmaz, A. (2011). Polymerization of N-Vinylcaprolactam and Characterization of Poly(N-Vinylcaprolactam). *Journal of Macromolecular Science, Part A: Pure and applied chemistry* , 467-477
- Liao, S. K.;Hung, C. C.;& Lin, M. F. (2004). A kinetic study of thermal degradations of chitosan/polycaprolactam blends. *Macromolecular Research*, 466-473
- Matricardi, P.;Meo, C. D.;Coviello, T.;Hennink, W. E.;& Alhaique, F. (2013). Interpenetrating Polymer Networks polysaccharide hydrogels for drug delivery and tissue engineering. *Advanced Drug Delivery Reviews*
- Rohindra, D.;Nand, A.;& Khurma, J. (2004). Swelling properties of chitosan hydrogels. *The South Pasific Journal Of Natural Science*, 32-35
- Sadeghi, M.;& Yarahmadi, M. (2011). Synthesis and characterization of superabsorbent hydrogel based on chitosan-g-poly (acrylic acid-co-acrylonitrile). *African Journal of Biotechnology*, 12265-12275
- Singh, M.;Narvi, S.;Dutta, P.;& Pandey, N. (2006). External stimuli response on a novel chitosan hydrogel crosslinked with formaldehyde. *Bull Mater Sci*, 233-238
- Sugita, P.;Wukirsari, T.;Sjahriza, A.;& Wahyono, D. (2009). *Kitosan : Sumber biomaterial masa depan*. Bogor: Penerbit IPB Press