

PENGARUH BILANGAN WEBER PADA PEMBUATAN *MICROSPHERE* BERBASIS POLIMETIL METAKRILAT

Indra Gunawan¹, Sudaryanto¹, Aloma K.K.¹, Rochmadi² dan Nurul E. E.³

¹Puslitbang Iptek Bahan (P3IB) - BATAN
Kawasan Puspipstek Serpong 15314, Tangerang

²Teknik Kimia, FT - UGM
Bulaksumur, Yogyakarta

³Tekno Kimia, STTN
Babarsari, Yogyakarta 55010

ABSTRAK

PENGARUH BILANGAN WEBER PADA PEMBUATAN *MICROSPHERE* BERBASIS POLIMETIL METAKRILAT. Telah dipelajari analisis kelompok tidak berdimensi pada pembuatan *microsphere*, berbasis polimetil metakrilat (PMMA). Serangkaian percobaan untuk memperoleh butir *microsphere* telah dilakukan dengan variasi kecepatan agitasi, dengan variabel proses lain dibuat tetap. Korelasi empiris yang menghubungkan diameter *microsphere* sebagai bilangan tidak berdimensi dengan bilangan Weber (*We*) telah diturunkan. Persamaan empiris yang diperoleh sangat bermanfaat untuk meramalkan diameter *microsphere* sesuai dengan spesifikasi yang diinginkan.

Kata kunci : *Microsphere*, analisa dimensi, bilangan Weber, polimetil metakrilat, korelasi empiris

ABSTRACT

THE INFLUENCE OF WEBER NUMBER ON SYNTHESIS OF POLYMETHYL METACRYLIC MICROSPHERE. A study of the dimensionless group of polymethyl metacrylic microsphere has been done. A sequence of the experiments were carried out to obtain a microsphere bead on different agitation rates and the other variables were set constant. Empirical correlation between Weber (*We*) number and microsphere diameter was derived, that is useful for prediction of a microsphere diameter according to purposed specification.

Key words : Microspheres, dimensional analysis, Weber number, polymethyl metacrylic, empirical correlation

PENDAHULUAN

Microsphere adalah partikel berbentuk bola berskala mikron, terbuat dari bahan keramik, kaca atau polimer sebagai pengungkung gas, larutan atau padatan dalam bentuk senyawa organik maupun anorganik. Bergantung pada jenis bahan pengungkung dan yang dikungkung, *microsphere* memiliki bidang aplikasi luas seperti kedokteran, pertanian dan industri. Aplikasi di bidang kedokteran nuklir sebagai pembawa radionuklida, juga tengah diupayakan walau masih dalam tahap penelitian [1,2].

Studi tentang sintesis *microsphere* berbasis polimetil metakrilat (PMMA) dan *microsphere* berbasis polimer *biodegradable* polilaktat (PLA) yang meliputi berbagai parameter proses, seperti konsentrasi polimer dan konsentrasi pengemulsi serta waktu pengadukan sistem emulsi secara kualitatif sudah dilakukan [3-5]. Namun demikian, studi pembuatan *microsphere* meliputi berbagai parameter proses yang lebih luas seperti konsentrasi, rapat massa, viskositas, tegangan muka,

diameter *baffle* pengaduk, diameter gelas secara kuantitatif dan sistematis dengan metoda analisis dimensi dalam bentuk bilangan tidak berdimensi perlu dilakukan.

Analisis dimensi secara sederhana adalah perangkat matematis untuk merencanakan penelitian dan membuat korelasi data penelitian, sehingga dapat mempersingkat waktu penelitian [6]. Dengan analisis dimensi ini korelasi yang sangat banyak dari variabel proses berkurang menjadi satu atau beberapa korelasi bilangan tidak berdimensi. Korelasi yang diperoleh merupakan korelasi empiris untuk proses sintesis *microsphere*.

Microsphere dapat dibuat dengan berbagai metode, seperti emulsifikasi, pemisahan fasa dan *spray drying*. Pada metode emulsifikasi pembuatan *microsphere* diikuti dengan penguapan pelarut dalam air, sehingga kadang juga disebut dengan metode penguapan pelarut [1]. Proses pembuatan *microsphere*

dengan metode emulsifikasi secara garis besar dilakukan sebagai berikut; polimer dilarutkan ke dalam pelarut yang mudah menguap dan tidak bercampur dengan air seperti kloroform, dan dicampur dengan air yang mengandung pengemulsi, biasanya adalah polivinil alkohol (PVA), di dalam sebuah tangki silinder. Campuran kemudian diaduk dengan kondisi tertentu menggunakan pengaduk biasa atau ultrasonik.

Emulsi yang terbentuk, selanjutnya dituangkan ke dalam air dalam jumlah yang banyak sambil diaduk dengan kecepatan dan waktu tertentu (disebut tahap evaporasi). Pembentukan *microsphere* dianggap terjadi pada tahapan emulsifikasi dan sudah tidak lagi dipengaruhi waktu pengadukan. Dengan anggapan tersebut diameter *microsphere* akan dihubungkan dengan variable proses, yaitu : diameter tangki silinder, diameter pengaduk, lebar *baffle*, tinggi posisi pengaduk dari dasar tangki, tinggi cairan di dalam tangki, kecepatan putar pengaduk, viskositas, berat jenis larutan, tegangan muka antar fasa. Secara matematis diameter *microsphere* sebagai fungsi parameter proses sintesis dituliskan sebagai :

$$d_m = f(d_p, d_g, d_b, Z, H, N, \mu, \rho, \sigma) \dots\dots\dots (1)$$

keterangan:

- d_m = diameter *microsphere* (cm)
- d_p = diameter pengaduk (cm)
- d_g = diameter gelas beker
(= diameter tangki silinder) (cm)
- d_b = lebar *baffle* (cm)
- Z = tinggi posisi pengaduk dari dasar tangki (cm)
- H = tinggi cairan di dalam tangki (cm)
- N = kecepatan putar pengaduk (rpm)
- μ = viskositas cairan ($\text{gcm}^{-1}\text{s}^{-1}$)
- ρ = berat jenis cairan (gcm^{-3})
- σ = tegangan muka antar fase cairan 1 dan cairan 2 (gs^{-2})

Dengan menggunakan analisis dimensi persamaan (1), dapat dituliskan sebagai hubungan antara bilangan tidak berdimensi. Secara pengamatan, diramalkan akan terdapat kumpulan kuantitas tidak berdimensi yang dikenal dengan bilangan *Reynold* (Re) karena terdapat kuantitas viskositas, dan bilangan *Weber* (We) karena terdapat kuantitas tegangan muka. Kumpulan bilangan tidak berdimensi yang merupakan kumpulan dari kuantitas-kuantitas yang diramalkan mempengaruhi pembentukan *microsphere*, adalah:

$$\left[\left(\frac{d_m}{d_p} \right), \left(\frac{\rho N d_p^2}{\mu} \right), \left(\frac{\rho N^2 d_m^3}{\sigma} \right), \frac{Z}{d_g}, \frac{d_p}{d_g}, \frac{d_b}{d_g}, \frac{H}{d_g} \right] \dots\dots(2)$$

Sehingga bentuk persamaan yang memuat diameter *microsphere* sebagai bilangan tidak berdimensi fungsi bilangan tidak berdimensi lainnya menjadi :

$$\left(\frac{d_m}{d_p} \right) = F \left[\left(\frac{\rho N d_p^2}{\mu} \right), \left(\frac{\rho N^2 d_m^3}{\sigma} \right), \frac{Z}{d_g}, \frac{d_p}{d_g}, \frac{d_b}{d_g}, \frac{H}{d_g} \right] \quad (3)$$

Sintesis *microsphere* dilakukan dengan mencampur dua larutan tidak saling larut menggunakan agitasi (pengadukan), salah satu larutan akan terdispersi sebagai *droplet* di dalam larutan lainnya. Dengan melihat viskositas larutan relatif rendah dan berat jenis kedua larutan hampir sama, maka pengaruh viskositas yang diwakili oleh bilangan *Reynold* selama pola aliran dapat diabaikan. Jumlah dispersi dan ukuran *droplet* kemudian hanya bergantung geometri sistem, kecepatan agitasi, dan tegangan antarmuka kedua cairan.

Mekanisme umum pembentukan dispersi adalah agitasi menyebabkan pembentukan gelembung turbulen pada fasa dispersi ikut berputar, dan gelembung ini karena pengaruh gaya sentrifugal terpecah menjadi gelembung lebih kecil, sehingga mencapai keadaan kesetimbangan dimana gaya sentrifugal diimbangi oleh tegangan antar muka [7]. Jika kelompok tidak berdimensi yang lain dibuat tetap selama percobaan, dihipotesiskan bilangan *Reynold* tidak berpengaruh terhadap proses, maka bentuk persamaan yang memuat diameter *microsphere* hanya dipengaruhi oleh bilangan *Weber* :

$$\left(\frac{d_m}{d_p} \right) = k(We)^a \dots\dots\dots (4)$$

dengan : k, a = konstanta

$$Re = \left(\frac{\rho N d_p^2}{\mu} \right) \dots\dots\dots (5)$$

$$We = \left[\frac{\rho N^2 d_m^3}{\sigma} \right] \dots\dots\dots (6)$$

Hasil yang diharapkan dari penelitian ini, adalah akan diperoleh hubungan kuantitatif pengaruh bilangan *Weber* terhadap diameter *microsphere* secara empiris dari serangkaian data percobaan. Korelasi empiris yang diperoleh sangat bermanfaat untuk meramalkan kondisi proses di dalam pembuatan *microsphere* berdiameter sesuai yang diinginkan, misalnya sebagai pengungkung radiofarmaka maka diameter *microsphere* berukuran kurang dari 50 μm .

METODE PERCOBAAN

Bahan

Polimetil metakrilat (PMMA, BM=120.000) diperoleh dari *Aldrich* (AS). Polivinil alkohol (PVA, BM=72.000) diperoleh dari *Merck* (Jerman). Pelarut yang digunakan adalah kloroform (CHCl_3) derajat pro analisis diperoleh dari *Merck*.

Cara Kerja

Dicampurkan masing-masing 50 mL larutan PMMA 2 % dan 50 mL larutan PVA 1 % ke dalam beaker gelas 300 mL yang telah diukur diameter gelas (d_g). Larutan polimer tersebut kemudian diaduk dengan magnetic stirrer tipe RW 10 R CE dalam lemari asam selama 2 jam dengan variasi skala kecepatan 4; 5; 5,5 dan 6 (atau 667 rpm ; 889 rpm ; 1.000 rpm ; dan 1.111 rpm), sedangkan variabel lain dibuat tetap selama keseluruhan proses. Setelah 2 jam, pengadukan emulsi dihentikan, dan kemudian diencerkan ke dalam 500 mL aquadest, diaduk dengan kecepatan sama dengan kecepatan yang digunakan untuk mengaduk larutan polimer selama 1 jam. Larutan emulsi dua polimer tersebut kemudian didiamkan selama 1 malam agar terjadi pengendapan. Endapan yang terbentuk kemudian didekantasi, yaitu pengambilan endapan *microsphere* dengan membuang aquadest, lalu endapan *microsphere* dituangkan ke dalam cawan petri. dan dikeringkan di dalam oven pada 60° C selama 24 jam. Ukuran *microsphere* diidentifikasi dengan menggunakan mikroskop optik.

Analisis Data

Bentuk persamaan $dm/dp = kWe^a$ diubah ke dalam bentuk persamaan $\ln (dm/dp) = \ln k + a \ln We$, sehingga dengan menggunakan regresi linear konstanta k dan a dapat ditentukan.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Untuk menghitung bilangan Weber (persamaan 6) diperlukan masukan kecepatan agitasi N yang divariasikan dari eksperimen, berat jenis ρ , diameter *microsphere* d_m yang diperoleh dari eksperimen dan tegangan antar muka σ . Berat jenis larutan ditentukan dengan menggunakan piknometer diperoleh $\rho = 1,2311$ g/mL. Tegangan antar muka dihitung dengan menggunakan persamaan *corresponding state* [4], diperoleh $\sigma = 28,4745$ g/s². Persamaan *corresponding state* [4] dapat dituliskan seperti persamaan :

$$\sigma_{mix}^{1/4} = \Psi_w \sigma_w^{1/4} + \Psi_o \sigma_o^{1/4} \dots\dots\dots (6)$$

dengan :

$$\log_{10} \left(\frac{\Psi_w}{1-\Psi_w} \right)^q = \log_{10} \left[\frac{(x_w V_w)^q}{x_o V_o} (x_w V_w + x_o V_o)^{1-q} \right] + 0,441 \frac{q}{T} \left[\frac{\sigma_o V_o^{2/3}}{q} - \sigma_w V_w^{2/3} \right]$$

$$\log_{10} \left(\frac{\Psi_o}{1-\Psi_o} \right)^q = \log_{10} \left[\frac{(x_o V_o)^q}{x_w V_w} (x_w V_w + x_o V_o)^{1-q} \right] + 0,441 \frac{q}{T} \left[\frac{\sigma_w V_w^{2/3}}{q} - \sigma_o V_o^{2/3} \right]$$

$$\Psi_w + \Psi_o = 1$$

$$x_o = \frac{V_o}{(V_w + V_o)}$$

$$x_w = \frac{V_w}{(V_w + V_o)}$$

dengan

- x_w = fraksi volume air
- x_o = fraksi volume organik
- V_w = volume molar air
- V_o = volume molar organik

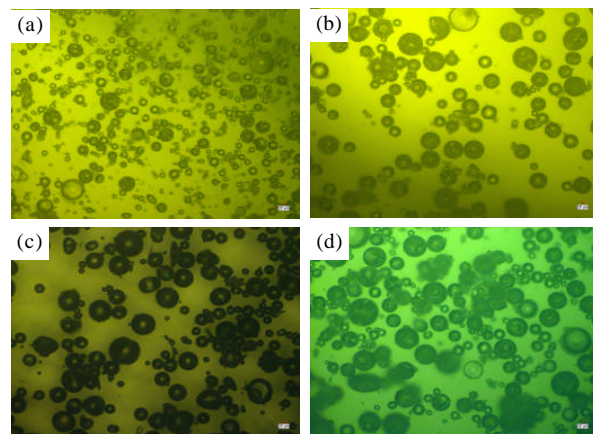
Tegangan muka masing-masing fasa dihitung dengan persamaan :

$$\sigma = P_c^{2/3} T_c^{1/3} Q (1 - T_r)^{11/9}$$

$$Q = 0,1207 \left(1 + \frac{T_{br} \ln P_c}{1 - T_{br}} \right) - 0,281$$

- P_c = tekanan kritis
- T_c = suhu kritis
- T_r = suhu tereduksi (suhu pengukuran dibagi suhu kritis)
- T_{br} = suhu didih tereduksi (suhu didih dibagi suhu kritis)

Diameter *microsphere* hasil sintesis dengan variasi kecepatan agitasi ditentukan skala ukurannya dengan menggunakan mikroskop optik. Gambar 1. memperlihatkan ukuran *microsphere* dimaksud. Tabel 1. memuat diameter *microsphere* sebagai fungsi kecepatan agitasi (rpm) dan bilangan Weber :

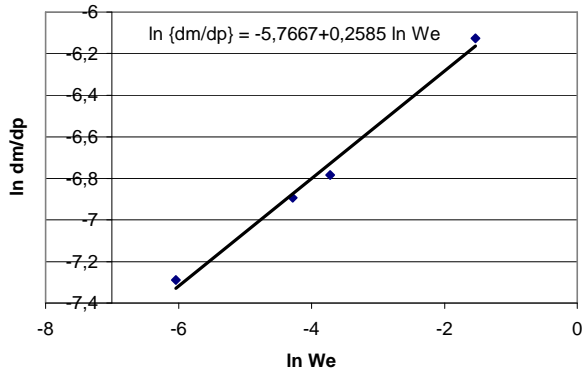


Gambar 1. Diameter *microsphere* hasil sintesis dilihat dengan mikroskop optik (skala = 20 μ), pada variasi kecepatan agitasi (a) 667 rpm, (b) 889 rpm, (c) 1000 rpm dan (d) 1111 rpm.

Tabel 1. Hubungan antara kecepatan agitasi (rpm), bilangan Weber terhadap diameter *microsphere* (cm).

N (rpm)	d_m cm	d_m/d_p	We	$\ln (We)$	$\ln (d_m/d_p)$
667	0,0023234	0,000683	0,002379	-6,04108	-7,2885
889	0,003446	0,001014	0,013789	-4,28388	-6,89427
1000	0,003845	0,001131	0,024236	-3,71992	-6,78472
1111	0,007429	0,002185	0,215703	-1,53385	-6,1262

Dengan melakukan pembuatan grafik dari dua kolom terakhir Tabel 1 di atas, diperoleh hubungan antara $\ln (d_m/d_p)$ terhadap bilangan Weber ($\ln We$), terlihat lebih jelas dengan Gambar 2.



Gambar 2. Regresi linear hubungan antara ln (d_m/d_p) terhadap bilangan Weber (ln We)

Regresi linear dari grafik tersebut menghasilkan persamaan :

$$\ln \frac{d_m}{d_p} = -5,7667 + 0,2585 \ln(We) \dots\dots\dots (8)$$

atau

$$\frac{d_m}{d_p} = 0,00313(We)^{0,2585} \dots\dots\dots (9)$$

Persamaan (9) menyatakan bahwa diameter *microsphere* d_m dipengaruhi oleh suatu konstanta, diameter pengaduk d_p dan bilangan Weber berpangkat 0,2585. Persamaan (9) adalah persamaan empiris pembentukan *microsphere* untuk polimer berbasis polimetilmetakrilat. Dengan persamaan tersebut kondisi proses untuk mendapatkan diameter *microsphere* sesuai dengan spesifikasi yang diinginkan dapat diramalkan.

KESIMPULAN

Pemahaman mekanisme proses pembentukan *microsphere* yang pada dasarnya adalah peristiwa fisika, tidak ada reaksi kimia yang terlibat di dalamnya membawa kesimpulan bahwa bilangan Weber berpengaruh pada proses tersebut. Secara empiris persamaan yang menghubungkan diameter *microsphere* terbentuk dengan variabel proses telah dapat diturunkan, diperoleh ukuran diameter *microsphere* berbanding langsung dengan bilangan Weber berpangkat 0,2585.

DAFTARACUAN

[1]. ORDER, S.E., SIEGEL, J.A., LUSTIG, R.A., PRINCIPATO, T.E., ZEIGER, L.S., JOHNSON, E., ZHANG, H., LANG, P., PILCHIK, N.B., METSZ, J., DENITTIS, A., BOERNER, P., BEUERLEIN, G., WALLNER, P.E., *Int. J. Radiation Oncology Biol. Phys.*, **30**, (1994), 715-720.
 [2]. NIJSEN, F., ROOK, D., BRANDT, C., MEIJER, R., DULLENS, H., ZONNEBERG, B., KLERK, J.D.,

RICJK, P.V., HENNINK, W., SCHIP, F.V.H., *Eur. J. Nucl. Med.*, **28**, (2001), 743-749
 [3]. SUDARYANTO, SUDIRMAN, ALOMA KARO KARO, INDRA GUNAWAN, TRI DARWINTO, DAN WAHYUDIANINGSIH, Pembuatan *Microsphere* berbasis Polimer *Biodegradable* Polilaktat, *Prosiding Simposium Nasional Polimer IV*, Jakarta, (2003) 181-188
 [4]. INDRA GUNAWAN, TRI DARWINTO, SUDARYANTO, ARI HANDAYANI, *Jurnal Sains dan Teknologi Nuklir Indonesia*, **4** (4) (2003) 1-8
 [5]. INDRA GUNAWAN, TRI DARWINTO, SUDARYANTO, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **5** (3) (2004) 44-47
 [6]. PERRY, R.H., GREEN, D., *Hand Book for Chemical Engineers*, McGraw Hill Book Co., New York, (1985)
 [7]. JOHSTONE, R.E., THRING, M.W., *Pilot Plants, Models, and Scale-Up Methods in Chemical Engineering*, McGraw Hill Book Co., Inc., New York, (1957)

LAMPIRAN

Diameter *microsphere*, d_m dinyatakan sebagai kuantitas-kuantitas yang berpengaruh

$$d_m = f(d_p, d_g, d_b, Z, H, N, \mu, \rho, \sigma) \dots\dots\dots (1)$$

keterangan:

- d_m = diameter *microsphere* (cm)
- d_p = diameter pengaduk (cm)
- d_g = diameter gelas *beaker* (= diameter tangki silinder) (cm)
- d_b = lebar baffle (cm)
- Z = tinggi posisi pengaduk dari dasar tangki (cm)
- H = tinggi cairan di dalam tangki (cm)
- N = kecepatan putar pengaduk (rpm)
- μ = viskositas cairan ($\text{gcm}^{-1}\text{s}^{-1}$)
- ρ = berat jenis cairan (gcm^{-3})
- σ = tegangan muka antar fase cairan 1 dan cairan 2 (gs^{-2})

Tanpa bukti hendaklah diterima, bahwa hubungan antara besaran-besaran dalam suatu peristiwa dapat dinyatakan sebagai fungsi pangkat, sehingga pembentukan *microsphere* dapat dinyatakan sebagai :

$$d_m = k d_p^a d_g^b d_b^c Z^d H^e N^f \mu^g \rho^h \sigma^i \dots\dots\dots (2)$$

pilih sistem *Mass* (M), *Length* (L), *time* (t) (3)

persamaan (2) dinyatakan dalam dimensi fundamental

$$L = L^a L^b L^c L^d L^e (t^{-1})^f (ML^{-1}t^{-1})^g (ML^{-3})^h (Mt^{-2})^i \dots\dots\dots (4)$$

Dari persamaan (4) diperoleh hubungan pangkat-pangkat sebagai berikut :

$$1 = a+b+c+d+e-g-3h \dots\dots\dots (5a)$$

$$0 = g+h+i \dots\dots\dots (5b)$$

$$0 = -f-g-2i \dots\dots\dots (5c)$$

Disini ada 8 bilangan tidak diketahui dengan 3 persamaan, jadi tidak dapat diselesaikan secara sempurna, 5 bilangan tidak diketahui tetap ada dan dipakai untuk menyatakan 3 lainnya.

Misalnya a, f, h dinyatakan dengan b, c, d, e, g, i :

$$a = 1-b-c-d-e+g-3h$$

$$f = -g-2i$$

$$h = -g-i$$

persamaan (2) kemudian dapat ditulis :

$$d_m = k d_p^{(1-b-c-d-e+g-3i)} d_g^b d_b^c Z^d H^e N^{(-g-2i)} \mu^g \rho^{(-g-i)} \sigma^i \dots\dots (6)$$

Dengan mengumpulkan kuantitas-kuantitas dalam pangkat yang sama

$$d_m = k d_p \left(\frac{d_g}{d_p}\right)^b \left(\frac{d_b}{d_p}\right)^c \left(\frac{Z}{d_p}\right)^d \left(\frac{H}{d_p}\right)^e \left(\frac{\mu}{d_p^2 N \rho}\right)^g \left(\frac{\sigma}{\rho N^2 d_p^3}\right)^i \dots (7)$$

atau

$$\left(\frac{d_m}{d_p}\right) = k \left(\frac{d_g}{d_p}\right)^b \left(\frac{d_b}{d_p}\right)^c \left(\frac{Z}{d_p}\right)^d \left(\frac{H}{d_p}\right)^e \left(\frac{\mu}{d_p^2 N \rho}\right)^g \left(\frac{\sigma}{\rho N^2 d_p^3}\right)^i$$

kuantitas di dalam tanda kurung adalah tidak berdimensi, kuantitas ini bersesuaian dengan yang telah diramalkan (*by inspection*) di dalam makalah ini.