Sintesis Nanofiller Dari Rumput Alang-Alang untuk Pembuatan Film Bioplastik Berbahan Dasar Pati-Kitosan

Endang Widiastuti[1,*], Ari Marlina[1]
[1]Jurusan Teknik Kimia,Politeknik Negeri Bandung,Bandung 40012
[*]E-mail : endwidy@polban.ac.id

ABSTRAK

Indonesia saat ini menempati urutan ke-2 sebagai negara penghasil sampah plastik. Oleh karena itu, dalam beberapa tahun terakhir, penelitian tentang plastik ramah lingkungan yang dikenal sebagai bioplastik sedang digalakkan. Bioplastik yang terbuat dari bahan alam, sifat mekaniknya tidak sebaik plastik jenis LDPE (Low Density Proly Ethylene). Salah satu bioplastik tersebut adalah berbahan dasar pati-kitosan, yaitu pati yang digunakan dari singkong atau disebut tapioka/pati. Pada penelitian ini, campuran pati-kitosan ditambahkan nanoselulosa dari rumput alang-alang sebagai nanofiller. Pertama, nanoselulosa diasetilasi kemudian dicampur dengan pati-kitosan. Bioplastik yang dibuat pada penelitian ini menggunakan perbandingan tapioka dan kitosan yakni 9 : 0,3. Bioplastik yang dibuat dari campuran pati-kitosan-nanoselulosa , memiliki kekuatan tarik 7,01 MPa, modulus Young atau kekuatan luluh 4,69 MPa dan perpanjangan putus 29,72% untuk ketebalan film 0,28 mm. Dari penelitian ini diketahui bahwa penambahan nanoselulosa dapat meningkatkan sifat mekanik bioplastik pati-kitosan, meskipun belum menyamai sifat mekanik bahan plastik LDPE.

Kata Kunci: nanoselulosa, asetilasi, bioplastik, sifat mekanis

ABSTRACT

Indonesia is currently the 2nd largest producer of plastic waste. Therefore, research on environmentally friendly plastics, known as bioplastics, has been promoted in recent years. Bioplastic is made from natural materials, and its mechanical properties are not as good as LDPE (Low-Density Poly Ethylene) plastic. One of the bioplastics is made from starch-chitosan, the starch used from cassava or called tapioca/starch. In this study, a mixture of starch-chitosan was added with nanocellulose from alang-alang grass as a nanofiller. The first, nanocellulose was acetylated and then mixed with starch-chitosan. Bioplastics were made in this study using a tapioca-chitosan ratio of 9: 0.3. Bioplastic Bioplastic made from a mixture of starch-chitosan-nanocellulose has a tensile strength of 7.01 MPa, Young's modulus or yield strength of 4.69 MPa and elongation of break 29.72% for a film thickness of 0.28 mm. This research shows that the addition of nanocellulose can improve the mechanical properties of starch-chitosan bioplastic. However, it has not matched the mechanical properties of LDPE plastic material.

Keywords: nanocellulose, acetylation, bioplastic, mechanical properties

PENDAHULUAN

Indonesia termasuk negara penghasil limbah plastik nomor dua setelah Cina, hal ini sungguh mengkhawatirkan. Pemerintah Indonesia telah berupaya dengan berbagai cara untuk mengurangi pemakaian plastik sebagai bahan pengemas, tetapi hingga saat ini belum berhasil. Ketergantungan masyarakat terhadap pemakaian plastik sudah menjadi bagian dari kehidupan sehari-hari.

Salah satu bahan plastik yang banyak digunakan adalah plastik jenis LDPE (*Low Density Poly Ethylene*),

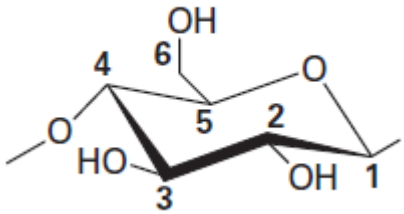
Plastik jenis ini memiliki struktur kimia polimer yang tidak terlalu rumit, sehingga bisa menghasilkan jenis polietilen yang lebih lunak dan fleksibel. LDPE biasa digunakan antara lain sebagai kantong/tas, pembungkus plastik, pelapis karton, juga digunakan untuk pelapis kabel dan kawat. LDPE merupakan salah satu jenis plastik yang dianggap cukup aman untuk mengemas makanan dan minuman. Tetapi, jenis plastik ini tidak mudah didaur ulang.

Masyarakat saat ini telah merasakan dampak dari limbah plastik, dan berusaha untuk mengurangi pemakaian plastik yang tidak ramah lingkungan. Meskipun demikian ketergantungan pemakaian plastik belum dapat dihilangkan sama sekali. Oleh karena itu, salah satu cara adalah membuat plastik yang mudah terdegradasi tanpa mengurangi sifat fisik dari plastik tersebut.

Untuk membuat plastik yang *biodegradable* tentunya harus dibuat dari bahan non sintetik atau bahan alam. Tetapi plastik *biodegradable* yang telah dihasilkan umumnya menunjukkan sifat mekanik dan sifat termal yang masih rendah (Suryati, 2016) . Untuk itulah perlu diberikan bahan pengisi (*filler*) agar dapat memperbaiki sifat mekanik dan termal tersebut. Nano *filler* merupakan salah satu alternatif nya. Ada 3 jenis nano filler yaitu *nanoplate*, *nanofiber* dan nanopartikel (Khalil.P.S, 2016). *Nano fiber* diperoleh dari selulosa yang dalam hal ini berasal dari rumput alang-alang (Widiastuti, 2020) .

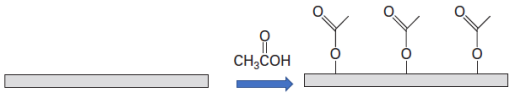
Nanopartikel selulosa dicirikan oleh agregasi ikatan hidrogen terinduksi yang diperbesar, karena mempunyai ukuran nano dan strukturnya serat. Oleh karena itu untuk menghidari terjadinya swa-agregasi dan mudah terdispersi dalam media bukan air, maka dilakukan modifikasi senyawa hidrofobik dengan teknik kopling kovalen dan non-kovalen (Dufresne, 2012), yaitu pembentukan ikatan tunggal kovalen dan non kovalen antara permukaan polimer dengan biomolekul, misalnya melalui proses asetilasi.

Selulosa merupakan senyawa reaktif karena mempunyai tiga gugus hidroksil pada setiap unit anhydro glukosa, seperti pada Gambar 1



Gambar 1 Penomoran rantai C pada anhydro glukosa dari selulosa.

Reaktivitas dari gugus hidroksil pada posisi karbon no. 6 lebih tinggi dibandingkan karbon pada posisi 2 dan 3. Ketiga gugus hidroksil tersebut dapat direaksikan dengan asam asetat hingga terbentuk nanoselulosa asetat.



Gambar 2 Asetilasi nanoselulosa

Gambar 2 menunjukkan proses asetilasi terhadap nanoselulosa, Proses tersebut telah diteliti oleh Shuang, dkk (Yang, et al., 2018) untuk pembuatan film nanoselulosa.

Nanoselulosa asetat merupakan jenis nanofiller jenis serat, yang ditambahkan pada pembuatan bioplastik pati tapioka-kitosan.

Pada penelitian sebelumnya sifat mekanis dari bioplastik pati tapioka – kitosan (Fathanah, 2015) memberikan hasil kekuatan tarik 38,25 MPa dan elongasi 26%, dengan jumlah kitosan yang digunakan 30%. Pada penelitian ini jumlah kitosan dikurangi, hal ini dilakukan karena kitosan harganya

relatif mahal dibandingkan pati tapioka, sehingga bila diproduksi pada skala besar akan memakan biaya cukup besar. Selain itu bioplastik tapioka-kitosan dengan penambahan *nanofiller* diharapkan mempunyai sifat mekanik yang mirip plastik LDPE yaitu kekuatan tarik 1,5 – 5 MPa; Modulus Young 20,40 MPa dan elongation of break 200 – 600 %.

METODE

Bahan dan Peralatan

Tepung amilum (kanji), kitosan *food-grade*, cuka *food-grade*, gliserin USP farmasi, nanoselulosa dari alang-alang, asam asetat glasial, toluena teknis dan asam perklorat teknis. Peralatan gelas, *hotplate* dan instrumentasi pengujian sifat mekanik di Jurusan Mesin PolBan.

.

Pembuatan Nanoselulosa asetat

Suspensi nanoselulosa ditambahkan toluena, asam asetat glasial dan asam perklorat masing-masing 25 mL, 5 mL dan 2 tetes. Campuran tersebut diaduk selama 2 jam pada suhu kamar. Nanoselulosa asetat berada pada lapisan bawah dari hasil reaksi tersebut

Pembuatan film bioplastik

Pembuatan bioplastik menggunakan Tapioka/kanji, kitosan, gliserol dengan memvariasikan nanofiller seperti yang tercantum pada Tabel 1

Tabel 1 Komposisi Pembuatan Film Bioplastik

No. sampel	Tapioka %	AIR %	Kitosan %	Kitin %	Cuka %	Nano selulosa %	Nano selulosa asetat %
A	8,9	89,1	0	0,2	1,8	0	0
B	8,9	89,1	0,2	0	1,8	0	0
C	8,7	86,9	0,3	0	1,7	0	2,3
D	8,7	86,5	0	0,2	0	0	4,6
E	8,8	87,7	0	0,3	2,6	0,6	0
F	8,8	87,9	0,3	0	2,7	0,4	0
G	8,9	88,5	0,3	0	1,8	0,6	0
H	8,9	88,6	0,2	0	1,8	0,6	0

Dalam pembuatan bioplastik tersebut menggunakan 2 cara yaitu

1. Campuran tapioka yang terdiri dari tapioka, air, gliserol dan nanoselulosa atau nanoselulosa asetilasi. Lalu dibuat campuran kitosan/kitin terdiri kitosan/kitin dengan cuka. Tahap selanjutnya mereaksi campuran tapioka dan kitosan pada suhu 70-80°C selama 5-10 menit hingga terbentuk jeli.
2. Campuran nanoselulosa, kitosan dan cuka, pencampuran ini dilakukan pada suhu 50-55°C selama 15 menit. Campuran kedua terdiri dari amilum, gliserol dan air. Selanjutnya mereaksikan campuran pertama dan kedua, pada suhu 70-80°C selama 5-10 menit hingga terbentuk jeli.

Proses pencetakan dari kedua metoda tersebut dilakukan pada wadah plastik

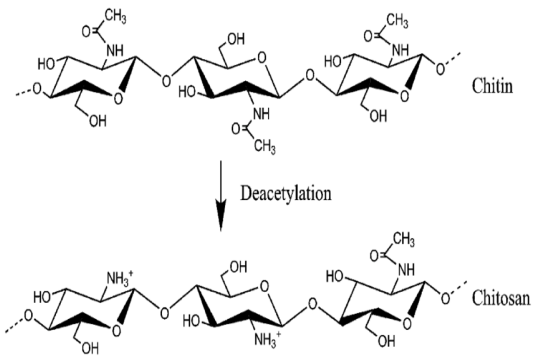
PE, dan dijemur pada suhu 28-30°C selama 3-4 hari. Setelah kering dan dapat terlepas dari cetakan plastik selanjutnya diuji sifat mekanisnya.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pemilihan Kitin atau Kitosan

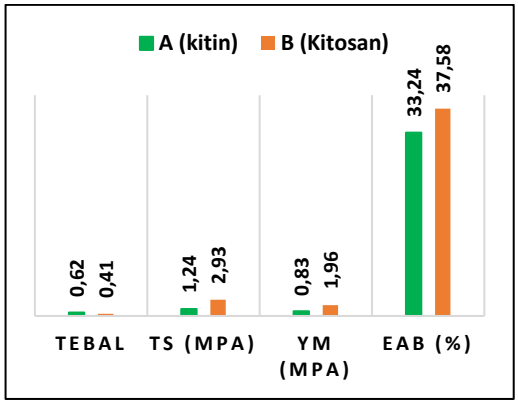
Kitosan diperoleh melalui proses deasetilasi kitin, oleh karena itu nilai jual kitosan jauh lebih mahal dari kitin. Pada pembuatan bioplastik diharapkan tidak membutuhkan biaya yang relatif besar agar biaya produksi nantinya tidak memakan biaya banyak. Pada penelitian ini akan dibandingkan sifat-sifat mekanis bioplastik yang menggunakan kitosan dan kitin.

Kitosan adalah kitin yang telah mengalami deasetilasi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3 berikut ini



Gambar 3 Kitin dan Kitosan (Nilsen-Nygaard, 2015)

Pada pembuatan bioplastik kitosan dilarutkan dalam asam asetat, pada penelitian terlihat adanya perbedaan penambahan kitin atau kitosan terhadap sifat mekanis dari film bioplastik



Gambar 4 Sifat mekanis bioplastik tapioka-kitin dan tapioka-kitosan

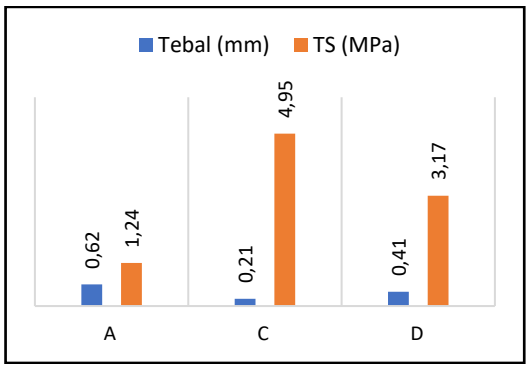
Gambar 4 memperlihatkan bioplastik tapioka-kitosan memiliki nilai kekuatan tarik, kekuatan luluh dan elongasi lebih baik daripada tapioka-kitin, seperti telah dijelaskan tidak adanya ikatan silang antara kitin dengan gugus hidroksil dari glukosida pada amilum.

Pengaruh Penambahan Nanofiller

Berikut ini penambahan nanofiller kedalam campuran bioplastik tapioka-kitin maupun tapioka-kitosan.

Kekuatan tarik (*Tensile Strength*, TS)

Kekuatan tarik pada bioplastik, dapat diinteprestasikan sebagai kekuatan ikatan silang yang terjadi pada campuran Kitosan, kitin/kitosan dan nanofiller. Nanofiller adalah nanoselulosa yang telah diasetilasi.

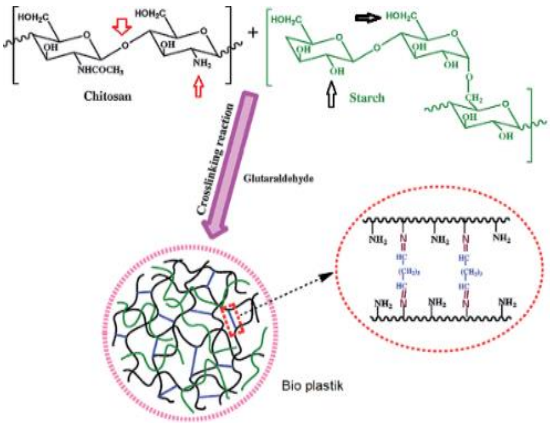


Gambar 5 Pengaruh kitin dan kitosan terhadap kekuatan tarik (TS) dari film bio plastik

Keterangan:
A: Bioplastik tapioka-kitin-gliserol

C: Bioplastik tapioka-kitosan- gliserol-nanoselulosa asetat
D: Bioplastik tapioka-kitin-gliserol-nanoselulosa asetat

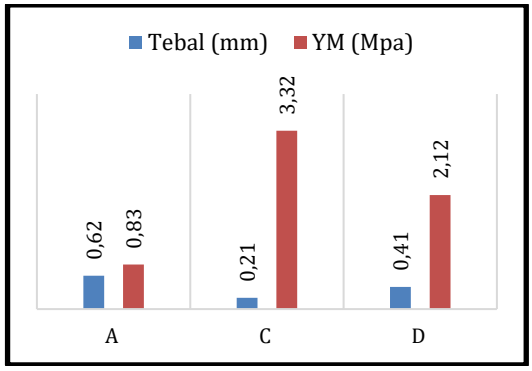
Pada Gambar 5 menunjukkan dari kekuatan tarik ketiga sampel tersebut dengan penambahan nanoselulosa yang telah diasetilasi memberikan kenaikan kekuatan tarik dibandingkan tanpa penambahan nanoselulosa asetat. Kenaikan yang cukup berarti terjadi pada campuran yang menggunakan kitosan, hal sesuai yang dilakukan oleh peneliti-peneliti sebelumnya (Hasan, Fazlia Inda Rahmayani, & Munandar, 2018); (Mutmainna, Tahir, Gareso, & Ilyas, 2019); (J.F. Mendes, 2016).
Menurut (Cheng, 2017), bioplastik amilum-kitosan membentuk ikatan antara gugus hidroksil dari glukosa pada karbohidrat (amilum) dengan gugus amino pada kitosan, yang tidak terdapat pada senyawa kitin.(Gambar 6)



Gambar 6 Reaksi Kitosan dan pati/amilum (Cheng, 2017)

Kekuatan Luluh (Young's Modulus, YM)

Berikut gambar yang menunjukan pengaruh kitin dan kitosan terhadap kekuatan luluh bioplastik yang ditambahkan nanoselulosa asetat (telah diasetilasi)

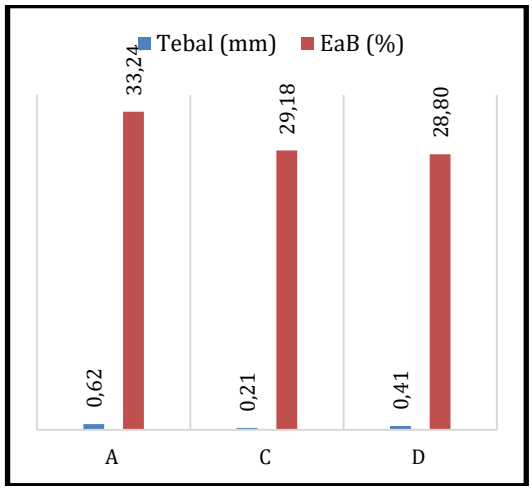


Gambar 7 Pengaruh kitin dan kitosan terhadap kekuatan luluh bioplastik

Seperti halnya kekuatan tarik, untuk kekuatan luluh pun bioplastik yang menggunakan kitosan lebih baik dari pada kitin, dapat dilihat pada Gambar 7.

Elongasi (*Elongation at Break,EaB*)

Sifat mekanis lainnya yang akan dilihat pengaruh penggunaan kitin dan kitosan dengan adanya filler nanoselulosa asetat, yaitu elongasi, yaitu fleksibilitas dan peregangan dari bioplastik.



Gambar 8 Elongasi dari kitin dan kitosan dengan adanya nanoselulosa asetat

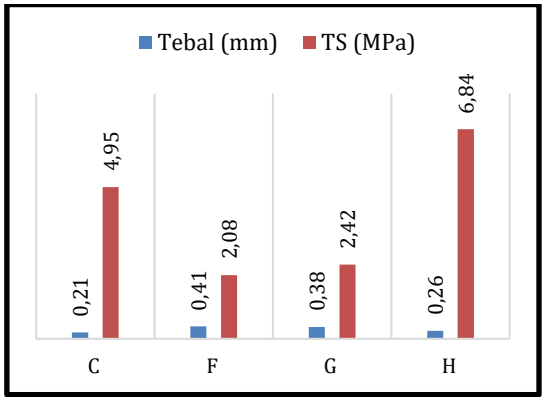
Gambar 8 memperlihatkan, baik penggunaan kitin maupun kitosan dengan adanya nanoselulosa asetat tidak menunjukan perubahan yang cukup bearti, meskipun demikian tapioka-kitosan memberikan elongasi yang lebih baik daripada tapioka-kitin.

Nanoselulosa dan nanoselulosa asetat

Sifat mekanis bioplastik amilum-kitosan masih dibawah plastik LDPE, untuk itu pada penelitian ini ke dalam campuran amilum-kitosan- gliserol ditambahkan filler yaitu nanoselulosa dari rumput alang-alang. Untuk mendapatkan hasil yang terbaik , diteliti dua jenis nanofiller yaitu nanoselulosa tanpa asetilasi dan yang diasetilasi terlebih dahulu.

Sifat Kekuatan Tarik(TS) Film bioplastik

Bioplastik amilum-kitosan ditambahkan nanofiller, diperoleh hasil sebagai berikut



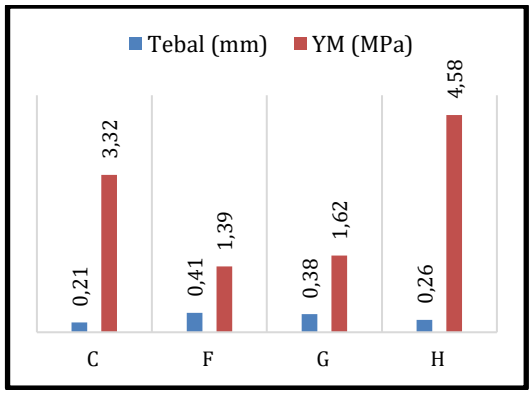
Gambar 9 Pengaruh nanoselulosa tanpa asetilasi dan asetilasi terhadap kekuatan tarik film bioplasti*k*

Keterangan:
C: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa yang diasetilasi
F & G: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi,
H: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi.
Nanoselulosa dan kitosan dicampurkan terlebih dahulu dalam cuka.

Pada Gambar 9, menunjukkan bahwa kekuatan tarik yang relatif besar terjadi pada sampel C dan H, hal ini menunjukkan bahwa kitosan direaksikan terlebih dahulu dengan nanoselulosa tanpa/dengan asetilasi, seperti halnya pada tapioka, selulosapun mengandung gugus hidroksil yang akan membentuk ikatan dengan gugus amino pada kitosan. Ukuran molekul selulosa yang nano memudahkan untuk bereaksi dan akan terperangkap dalam polimer bioplastik amilum-kitosan. Kekuatan tarik ini menunjukan kemampuan plastik berubah dari elastis ke deformasi plastis. Disini sampel H, setelah ditarik film plastik berubah mengecil artinya terjadi deformasi permanen dan *irreversible*.

Sifat Kekuatan luluh (YM) Film bioplastik

Sifat modulus Young sering disebut sebagai modulus elastis, besaran ini dipengaruhi oleh dimensi bahan selain dari sifat bahan yang diuji. Parameter ini sangat dipengaruhi ikatan dan kekuatannya yang terjadi pada saat polimerisasi. Semakin kuat ikatan yangterjadi maka nilai YM semakin besar. Dengan penambahan nanofiller baik itu nanoselulosa yang diasetilasi terlebih dahulu maupun tanpa diasetilasi, kekuatan luluh atau modulus elastis dari bioplastik menjadi meningkat, karena polimer yng terjadi semakin kompleks dengan adanya nanoselulosa, seperti yang terlihat pada Gambar 10.



Gambar 30 Pengaruh nanofiller terhadap nilai kekuatan luluh dari film bioplastik

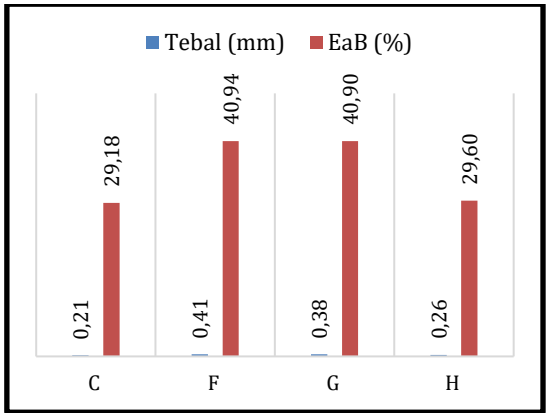
Keterangan:
C: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa yang diasetilasi
F & G: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi,
H: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi dan Nanoselulosa

serta kitosan dicampurkan terlebih dahulu dalam cuka.

Jumlah nanofiller yang ditambahkan juga akan meningkatkan nilai kekuatan luluh (YM).

Sifat Elongasi (*Elongation at Break, EaB)*

Kenaikan nilai dari parameter kekuatan tarik dan kekuatan luluh tidak diikuti oleh nilai elongasi, karena ikatan yang terjadi pada polimer semakin kompleks, sehingga sifat elastis dari film bioplastik semakin menurun, seperti yang ditunjukan pada Gambar 11,



Gambar 11 Pengaruh nanofiller terhadap elongasi (EaB) dari film bioplastik

Keterangan:
C: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa yang diasetilasi
F & G: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi,
H: bioplastik tapioka-kitosan ditambahkan nanoselulosa tanpa asetilasi dan nanoselulosa serta kitosan dicampurkan terlebih dahulu dalam cuka.

Nilai elongasi sampel F atau G lebih tinggi dari pada sampel C atau H, yang berarti sampel bioplastik F/G lebih mudah terdeformasi, Bahan/sampel F atau G lebih tebal dari pada sampel C atau H, hal tersebut juga mempengaruhi nilai elongasi yang lebih tinggi (Nandiyanto, 2020). Bioplastik dengan penambahan nanofiller berupa nanoselulosa bearti semua gugus amino yang ada pada kitosan membentuk ikatan yang kompleks dengan gugus hidroksil dari primer glukosa baik dari nanoselulosa maupun tapioka, artinya kitosan dalam campuran tersebut perlu dinaikan komposisinya. Seperti diketahui kitosan berperan sebagai *plasticizer*, seperti halnya gliserol.

Secara keseluruhan, penambahan nanoselulosa dalam pembuatan bioplastik tepung tapioka - kitosan meningkatkan sifat mekanik, terutama kekuatan tarik dari 2,93 MPa menjadi 7,01 MPa atau meningkat sebesar 139% dan kekuatan luluh (*modulus Young*) semula 1,96 MPa menjadi 4,69 MPa atau naik sebesar 139%, tetapi elongation of break (elongation) turun sebesar 21%, dari 37,58 MPa menjadi 29,72 MPa. Jika dibandingkan dengan plastik LDPE (*Low Density Poly Ethylene*) yang mempunyai kekuatan tarik 1,5 – 5 MPa; *Modulus Young* 20,40 MPa dan *elongation of break* 200 – 600 %, maka bioplastik yang dihasilkan dari penelitian ini belum dapat disetarakan dengan sifat plastik LDPE, terutama sifat modulus Young dan elongasinya, tetapi nilai kekuatan tarik melebihi dari LDPE.

SIMPULAN

Kitin dapat digunakan untuk pembuatan bioplastik berbahan pati singkong (amilum) tetapi dibandingkan dengan kitosan, sifat mekanis dari bioplastik amilum- kitosan lebih baik.

Metoda pembuatan bioplastik yang ditambahkan nanoselulosa sangat mempengaruhi kekuatan tarik dan kekuatan luluh dari bioplastik yang dihasilkannya, tetapi elongasi bioplastik terjadi penurunan karena zat *plasticizer* yaitu kitosan, yang ditambahkan ke dalam campuran terlalu sedikit.

Sifat mekanis dari bioplastik yang dihasilkan dengan penambahan nanofiller yaitu nanoselulosa, mempunyai kekuatan tarik 7,02 MPa,

modulus Young (kekuatan luluh) 4,96 MPa dan elongation (elongasi) 29,72 %. Kekuatan tarik dari bioplastik pada penelitian ini melebihi nilai kekuatan tarik dari LDPE yaitu 1,5 – 5 MPa.

UCAPAN TERIMA KASIH

Pada kesempatan ini tak lupa kami mengucapkan banyak terima kasih kepada Politeknik Negeri Bandung yang telah menyediakan dana dan memfasilitasi kegiatan penelitian mandiri ini.

DAFTAR RUJUKAN

[1] Dufresne, A. (2012). 5 Chemical modification of nanocellulose. In A. Dufresne, *Nanocellulose: From Nature to High Performance Tailored Materials* (pp. 147-192). Berlin, Boston: De Gruyter.

[2] Fathanah, U. L. (2015). OPTIMASI PROSES PEMBUATAN BIOPLASTIK DARI PATI. *The 5th Annual International Conference Syiah Kuala University (AIC Unsyiah)* (pp. 44 - 49). Banda Aceh: Syiah Kuala Universit.

[3] Cheng, B. &. (2017). Advances in chitosan-based superabsorbent hydrogels. *Royal Society of Chemistry*, 42036-42046.

[4] Hasan, M., Fazlia Inda Rahmayani, R., & Munandar. (2018). Bioplastik from Chitosan and Yellow Pumpkin Starch with Castor Oil as Plastikizer. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* (pp. 1-5). Solo: IOP Publishing Ltd.

[5] J.F. Mendes, R. P. (2016). Biodegradable polymer blends based on corn starch and thermoplastik chitosan processed by extrusion. *Carbohydrate Polymers, volume 137*, 452-458.

[6] Khalil.P.S, A. S. (2016). A review on chitosan-cellulose blends and nanocellulose reinforced chitosan biocomposites: Properties and their applications. *Carbohydrate Polymers*, 216-226.

[7] .Mutmainna, I., Tahir, D., Gareso, P., & Ilyas, s. (2019). Synthesis composite starch-chitosan as biodegradable plastik for food packaging. *Journal of Physics: Conference Series*, 1-5.

[8] Nandiyanto, A. F. (2020). MECHANICAL AND BIODEGRADATION PROPERTIES OF. *Materials Physics and Mechanics , vol. 44*, 380-391.

[9] Nilsen-Nygaard, J. &. (2015). Chitosan: Gels and Interfacial Properties. *Polymers, no. 7*, 552-579.

[10] Suryati, M. M. (2016). Optimasi Proses Pembuatan Bioplastik dari Pati Limbah Singkong. *Jurnal Teknologi Kimia Unimal*, 78-91

[11] Widiastuti, E. d. (2020). Optimasi pembuatan nano selulosa dari Rumput Alang-alang. *Fluida*, 15-19.

[12] Yang, S., Xie, Q., Liu, X., Wu, M., Wang, S., & Song, X. (2018). Acetylation improves thermal stability and transmittance in FOLED substrates based on nanocellulose film. *Royal Society of Chemistry Advances*, 3619 - 3625.