



Sintesa dan Karakterisasi Biokomposit Material dari Biodegradable Polimer Poly L-Lactic Acid (PLLA) dan Selulosa

Mayang Ayudhawara Subaghio¹, Hikmatun Ni'mah^{2*}, Prida Novarita T.³, Sumarno⁴

Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)
Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

*E-mail: hikmatun_n@chem-eng.its.ac.id

Abstract

Biodegradable biocomposites films made from a mixture of poly (L- lactide acid) (PLLA) and MCC (microcrystalline cellulose) with a weight ratio of MCC 0%;2.5%;5%;7.5%; and 10% by using solvent blending techniques. The aim of this study is to investigate the effect of MCC addition on the transparency, dispersion, thermal stability and mechanical properties of biocomposite products. The transparency of biocomposite films decrease with the addition of MCC filler dispersed in the PLLA matrix. The SEM results show that the more filler addition the more PLLA matrices that are filled by filler. Thermogravimetric analysis shows that the addition of MCC increase in thermal stability of biocomposites film. Most stable biocomposite film is reached by the composite with MCC content of 5 wt% with T_{onset} 309,35°C. Mechanical tests on biocomposite test include tensile strength and elongation at break. The value of tensile strength of biocomposite films decrease with the increasing MCC content, the highest value of tensile strength is 39 Mpa which is for neat PLLA. The elongation at break in the biocomposite films decrease with the addition of MCC, the highest value of elongation at break is 11% which is for neat PLLA.

Keywords: *biocomposite, PLLA, microcrystalline cellulose, biodegradable.*

Pendahuluan

Setiap tahun sekitar 5,4 juta ton plastik kemasan sintetik diproduksi dunia untuk digunakan di berbagai sektor industri. Volume sampah plastik di Indonesia menghasilkan 1 juta m³ sampah plastik per hari. Namun, baru 20% diantaranya yang diolah dengan baik. Jadi, sampah plastik yang tidak diangkut setiap harinya sekitar 348 ribu m³ atau sekitar 300 ton.

Plastik yang digunakan saat ini merupakan polimer sintetik, terbuat dari minyak bumi (*nonrenewable*) yang tidak dapat didegradasi oleh mikroorganisme di lingkungan. Kondisi demikian ini menyebabkan kemasan plastik sintetik tersebut tidak dapat dipertahankan penggunaannya secara meluas karena akan menambah persoalan lingkungan dan kesehatan di waktu mendatang. Latief (2001) mengatakan berdasarkan fakta dan kajian ilmiah yang ada serta meningkatnya kesadaran masyarakat akan pentingnya kesehatan dan lingkungan lestari, perlu dilakukannya penelitian dan pengembangan teknologi bahan kemasan yang bersifat *biodegradable*.

Plastik biodegradable adalah plastik yang akan terurai di alam dengan bantuan mikroorganisme. Plastik biodegradable terbuat dari material yang dapat diperbaharui, yaitu dari senyawa-senyawa yang terdapat dalam tanaman misalnya selulosa, kolagen, kasein, protein atau lipid yang terdapat dalam hewan. Jenis plastik biodegradable antara lain polyhidroksialkanoat (PHA) dan poli-asam amino yang berasal dari sel bakteri, polilaktida (PLA) yang merupakan modifikasi asam laktat hasil perubahan zat tepung kentang atau jagung oleh mikroorganisme, dan poliaspartat sintesis yang dapat terdegradasi. Bahan dasar plastik berasal dari selulosa, khitin, khitosan, atau tepung yang terkandung dalam tumbuhan.

PLLA sebagai bahan biodegradable plastik mempunyai sifat mekanis yang bagus, tingkat hidrofob yang rendah, dan stabilitas thermal yang rendah. Akan tetapi PLLA tidak tahan pada suhu tinggi dan sensitif pada kelembaban, untuk itu bahan tersebut perlu dipadukan dengan material lain untuk memperbaiki kekurangannya. Salah satu material yang dapat digunakan untuk meningkatkan properti dari PLLA adalah selulosa. Selulosa merupakan komponen utama penyusun dinding sel tanaman. Kandungan selulosa pada dinding sel tanaman tingkat tinggi sekitar 35-50% dari berat kering tanaman (Saha, 2004). Selulosa terdapat pada semua tanaman dari pohon tingkat tinggi hingga organisme primitif seperti rumput laut, flagellata, dan bakteri (Fengel dan Wegner, 1995). Selulosa bertindak sebagai filler yang dapat memperbaiki property PLLA karena selulosa mempunyai sifat mekanik yang bagus, ketahanan minyak dan uap air, selain itu selulosa ketersediaannya tinggi dan harganya murah.



Tetapi, selulosa mempunyai kelemahan, yaitu mudah rapuh, sensitif terhadap kelembapan, dan mempunyai suhu pelunakan yang rendah.

Selulosa yang digunakan dalam penelitian ini adalah *MCC (Microcrystalline cellulose)* yang bertindak sebagai filler dan bahan yang dapat mengurangi kerapuhan serta menambah sifat mekanis pada plastik biodegradable. Modifikasi dari pencampuran asam polilaktat dan *MCC (Microcrystalline cellulose)* tersebut diharapkan dapat membentuk polimer baru yang sifatnya yang stabilitas thermal dan kekuatan mekaniknya lebih baik dari polimer asli (PLLA), sehingga penggunaannya dapat digunakan secara luas atau dapat berkembang menjadi industri besar pada masa yang akan datang.

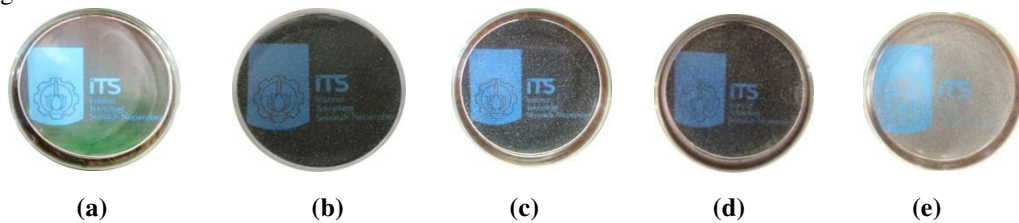
Metode Penelitian

Sintesa biokomposit dibuat dengan cara mencampurkan PLLA (*Poly L-Lactic Acid*) dan *MCC (Microcrystalline Cellulose)* sesuai variabel penelitian dengan kloroform untuk membentuk larutan polimer dengan konsentrasi 5% berat. Lalu campuran tersebut dipanaskan dan diaduk sampai homogen pada suhu 60°C selama 24 jam menggunakan hotplate. Kemudian film dicetak pada cawan petri pada suhu kamar dan dikeringkan selama 6 jam dari sisa solvent dengan *hood*. Biokomposit film yang terbentuk kemudian dikarakterisasi transparansinya, dispersi fillernya dengan SEM, kestabilan suhunya dengan TGA, dan sifat mekaniknya.

Hasil dan Pembahasan

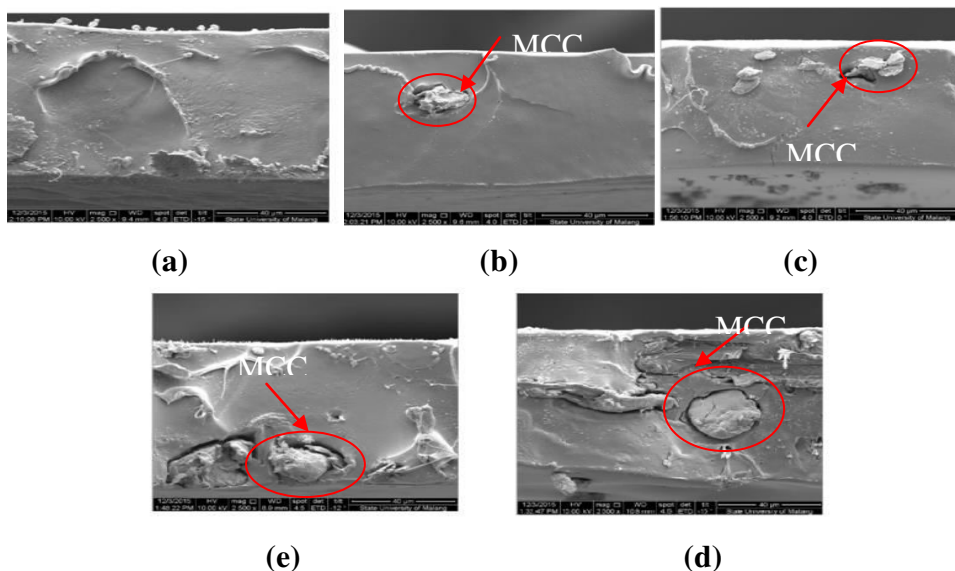
Pengaruh Penambahan MCC pada Transparansi Film

Transparansi film dapat dilihat dari penampilan visual pada lapisan film yang dihasilkan. Semakin banyak komposisi filler yang ditambahkan semakin berkurang transparansi dari lapisan film tersebut, hal tersebut dikarenakan semakin banyak filler semakin banyak yang terdispersi pada bagian permukaan film. MCC yang ditambahkan membentuk agregat dengan PLLA sehingga terlihat gumpalan MCC yang tersebar di permukaan film. terlihat pada gambar 1 berikut ini:



Gambar 1. Perbandingan visual dari transparansi plastik biodegradable PLLA/MCC (a)100/0, (b) 97,5/2,5, (c) 95/5, (d) 92,5/7,5,dan (e) 90/10.

Pengaruh Penambahan MCC pada Morfologi Film

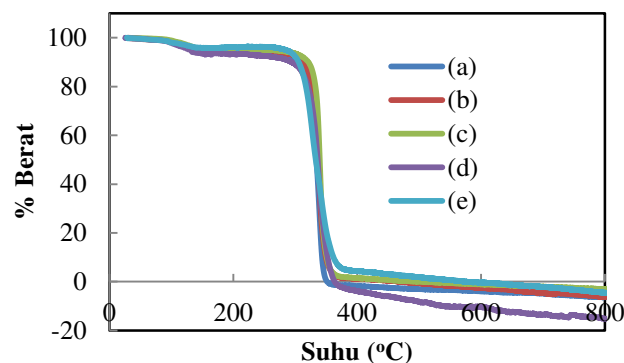


Gambar 2 Hasil analisa SEM (*Scanning Electro Microscopy*) PLLA/MCC bagian patahan dengan perbesaran 2500x (a) 100/0, (b) 97,5/2,5, (c) 95/5,(d) 92,5/7,5 dan (e) 90/10.

Hasil analisa dengan SEM (*Scanning Electro Microscopy*) bagian patahan gambar 2 dengan pembesaran 2500 kali menunjukkan matriks PLLA di bagian patahan pada gambar (a) semakin banyak MCC yang ditambahkan pada komposit, semakin banyak juga matriks PLLA yang terisi oleh filler MCC. Tapi pada gambar (b),(c),(d), dan (e) penyebaran filler pada matriks secara mikro kurang merata. Hal tersebut ditunjukkan dari gambar matriks yang tidak semua bagian matriks terisi oleh filler.

Pengaruh Penambahan MCC pada Kestabilan Thermal Film

TGA (*Thermogravimetry Analysis*) analisa yang memberikan informasi tentang penurunan berat atau massa biokomposit terhadap perubahan suhu yang diberikan. Penurunan massa tersebut menunjukkan adanya reaksi penguraian atau reaksi kimia pada produk biokomposit.



Gambar 3 Hasil analisa TGA (*Thermogravimetry Analysis*) PLLA/MCC (a)100/0, (b) 97,5/2,5, (c) 95/5, (d) 92,5/7,5,dan (e) 90/10

Gambar 3 menunjukkan penguraian massa produk biokomposit dengan penambahan MCC pada suhu tertentu sampai akhirnya habis. Pada gambar 3 mulai terjadi pelelehan produk pada suhu 150°C lalu terjadi penguraian atau dekomposisi massa pada suhu 250°C sampai akhirnya pada suhu 800°C produk biokomposit benar-benar habis. Gambar tersebut menunjukkan penguraian massa terjadi paling banyak pada produk biokomposit PLLA/MCC 92,5/7,5.

Tabel 1 Kestabilan Suhu Produk Biokomposit PLLA/MCC

Komposisi PLLA/MCC	T _{onset} (°C)	T ₂₀	T ₅₀	Berat sisa saat 350°C
100/0	299,021	321,69	334,07	0,423
97,5/2,5	286,44	320	336,4	9,0353
95/5	309,35	332,3	339,31	10,641
92,5/7,5	288,73	320,183	335,8	12,909
90/10	294,75	316,963	332,8	20,494

Pada Tabel 1 menunjukkan data T_{onset} atau suhu degradasi dari produk biokomposit. Pada saat T₂₀ dan T₅₀, menunjukkan suhu saat massa biokomposit berkurang sebanyak 20% dan 50%. Dari tabel tersebut, didapatkan bahwa terjadi peningkatan stabilitas thermal pada biokomposit PLLA/MCC 90/10 bila dibandingkan dengan PLLA/MCC 100/0 sebesar 299,021°C menjadi 309,35°C. Hal ini disebabkan semakin banyak MCC yang ditambahkan, makin tinggi kristalinitas biokomposit tersebut. Maka panas yang diperlukan untuk menguraikan struktur kristal dari biokomposit tersebut juga semakin tinggi.

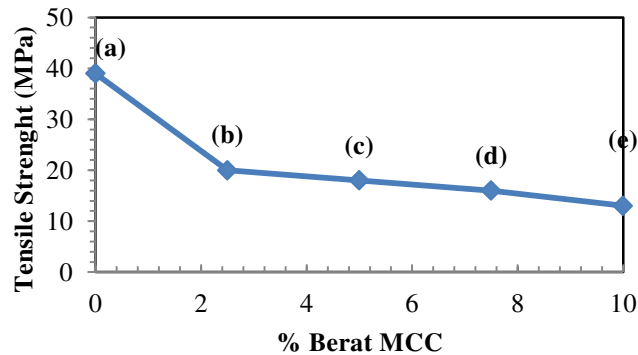
Tabel 2 Suhu maksimal penggunaan plastik yang beredar di pasaran

Jenis Plastik	Suhu Maksimal (°C)
Polyterephthalete (PET)	170
Polyethylene (High Density)	120
Polyethylene (Low Density)	90
Polyvinyl Chloride (PVC)	60
Polystyrene (PS)	95
Polypropylene (PP)	120

Produk biokomposit yang dihasilkan mampu bekerja dibawah titik leleh atau suhu dibawah 150°C hampir sama seperti plastik yang beredar di pasaran yang mampu bekerja pada kisaran suhu 60 °C untuk PVC dan 170 °C untuk PET, seperti yang disajikan pada Tabel 2.

Pengaruh Penambahan MCC pada Kekuatan Mekanik Film

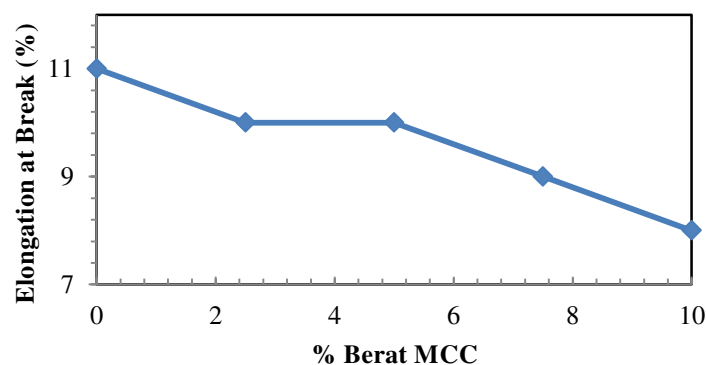
Uji kekuatan mekanik ini bertujuan untuk mengetahui kemampuan biokomposit film dari PLLA/MCC untuk menerima beban, gaya dan energi tanpa menimbulkan kerusakan. Pengujian kekuatan menggunakan standart uji ASTM 638.



Gambar 4 Hasil analisa *Tensile Stength* PLLA/MCC (a)100/0, (b) 97,5/2,5, (c) 95/5, (d) 92,5/7,5,dan (e) 90/10.

Penambahan MCC pada biokomposit film tidak memberi pengaruh yang signifikan pada nilai *tensile* dan nilai *Elongation at break*. Nilai *tensile strength* dari biokomposit film mengalami penurunan dengan bertambahnya MCC yang ditambahkan, hal tersebut disebabkan semakin banyak MCC yang ditambahkan semakin banyak pula aglomerasi antara MCC dan PLLA sehingga semakin besar energi yang diperlukan untuk menarik film tersebut sampai akhirnya putus. Menurut Yew, Mohd Yusof, Mohd Ishak, dan Ishiaku (2005). Semakin banyak MCC yang ditambahkan kecenderungan MCC untuk beraglomerasi juga semakin tinggi.

Hasil analisa *tensile strength* dari produk biokomposit yang dihasilkan nilainya sudah mencakup range nilai *tensile strength* produk yang banyak beredar di pasaran yang berkisar antara 10-75MPa.



Gambar 5 Hasil Analisa *Elongation at Break* PLLA/MCC (a)100/0, (b) 97,5/2,5, (c) 95/5, (d) 92,5/7,5,dan (e) 90/10.

Hasil *Elongation at Break* pada biokomposit film mengalami penurunan dengan penambahan MCC. Penurunan nilai pemanjangan pada saat putus menunjukkan penurunan kemampuan bahan pengisi untuk menyokong perpindahan tegangan (*stress*) dari bahan polimer ke matriks. Hal tersebut disebabkan karena kecenderungan agregasi antara MCC dan PLLA, sehingga penyebaran filler MCC pada matriks PLLA kurang merata.

Jika dibandingkan dengan plastik konvensional yang beredar di pasaran, nilai *Elongation at Break* produk biokomposit yang dihasilkan jauh lebih kecil dibandingkan produk yang beredar di pasaran. Produk dipasaran mempunyai nilai *Elongation at Break* 1,5-300 %, seperti yang disajikan pada Tabel 3.

Tabel 3 Sifat mekanis plastik yang beredar di pasaran

Jenis Plastik	Tensile strength (MPa)	Elongation at Break (%)
Polyterephthalete (PET)	75	70
Polyethylene (High Density)	32	150
Polyethylene (Low Density)	10	400
Polyvinyl Chloride (PVC)	14-50	80-300
Polystyrene (PS)	40	1,5
Polypropylene (PP)	33	50

Kesimpulan

1. Transparansi biokomposit film PLLA-MCC menurun dengan bertambahnya MCC pada campuran.
2. Dispersi filler pada biokomposit film PLLA-MCC menunjukkan semakin banyak filler yang ditambahkan semakin banyak matriks PLLA yang terisi oleh filler.
3. Hasil analisa kestabilan thermal menunjukkan produk biokomposit film yang paling stabil adalah produk biokomposit PLLA/MCC 95/5 dengan T_{onset} 309,35°C
4. Nilai *tensile strength* dari biokomposit film mengalami penurunan dengan bertambahnya MCC yang ditambahkan, nilai *tensile strength* tertinggi pada campuran PLLA 100% sebesar 39 MPa sedangkan hasil *Elongation at Break* pada biokomposit film mengalami penurunan dengan penambahan MCC, nilai *Elongation at Break* tertinggi pada campuran PLLA 100% sebesar 11%.

Daftar Notasi

T = Temperatur [°C]

P = Tekanan [atm]

σ = Kekuatan tarik [mPa]

Daftar Pustaka

- A.P. Mathew, K. Oksman, and M. Sain, "Mechanical properties of biodegradable composites from poly lactic acid (PLA) and microcrystalline cellulose (MCC (Microcrystalline Cellulose))." *Journal of Applied Polymer Science* 2005; vol. 97, no. 5, pp. 2014–2025.
- Auras, R., Lim, L.K., Selke, S.M., and Tsuji, H., *Poly(Lactic Acid): Synthesis, Structures, Properties, Processing, and Applications* New Jersey: John Wiley & Sons, Inc. 2010.
- Bastioli, Catia. *Global Status of the Production of Biobased Packaging Materials Italy:Novara*. 2002.
- Environment Australia, *Biodegradable Plastik – Developments and Enviromental Impacts*. Nolan-Itu Pty Ltd. 2002.
- Fengel, D., G. Wegener..*Kayu : Kimia, Ultrastruktur, Reaksi-reaksi*. Diterjemahkan oleh Hardjono Sastrohamidjoyo. Yogyakarta; Gajah Mada University Press. 1995.
- Garlotta, D., A Literature Review of Poly(Lactic Acid), *Journal of Polymers and the Environment* 2011;vol. 9, no. 2, pp. 63 – 84.
- Haafiz Mohamad M.K. , Hassan Azman , Zakaria Zainoha , Islamd I.M. Inuwa ,M.S. , Jawaide M. Properties of polylactic acid composites reinforced with oil palmbiomass microcrystalline cellulose. *Carbohydrate Polymers* 2013;98 139– 145.
- Hirata, M.and Kimura, Y., Structure and Properties of Stereocomplex-Type Poly(lactic acid), in *Poly (Lactic Acid): Synthesis, Structures, Properties, Processing, and Applications* (eds R. Auras, L.T. Lim, S.E.M. Selke and H. Tsuji) NJ,USA: John Wiley& Sons, Inc., Hoboken 2010;pp. 59-65.
- Latief, R. *Teknologi Kemasan Kemas Biodegradable*, Makalah Falsafah Sains (PPs 702),2001.
- Pei, Q. Zhou, and L. A. Berglund, "Functionalized cellulose nanocrystals as biobased nucleation agents in poly(l-lactide) (PLLA)—crystallization and mechanical property effects,". *Composites Science and Technology* 2010;vol. 70, no. 5, pp. 815–821.
- Syamani, Firda Aulya, Kurniawan,Yudhi Dwi, Suryanegara Lisman. *Cellulose Fibers From Oil Palm Fronds Reinforced Polylactic Acid Composite*. Research Center for Biomaterials, Indonesian Institute of Sciences, 2012.
- Tsuji, H., *Poly(lactide) Stereocomplex: Formation, Structure, Properties, Degradation, and Application*, *Macromolecular Bioscience*. 2005. 5, pp. 569-597.



Lembar Tanya Jawab

Moderator : Akbarningrum Fatmawati (Ubaya Surabaya)

Notulen : Retno Ringgani (UPN "Veteran" Yogyakarta)

1. Penanya : Rosadela (UNS Surakarta)
Pertanyaan : Kenapa ada 2 metode memilih metode solution Blending pada penelitian ini? Aplikasi di penggunaan apa? Apa elastik yang di produksi bisa digunakan?
Jawaban : Karena solution blending bisa bekerja pada suhu yang lebih rendah dari metode yang lain. Untuk pelapisan kapsul obat, untuk penelitian lanjutan ingin menjadikan plastik kemasan akan tetap masih perlu penelitian yang lebih detail lagi.

2. Penanya : Lestari (Poltek LPP)
Pertanyaan : Apakah syarat plastik bisa didegradasi atau tidak? Bagaimana dengan sifat mekaniknya?
Jawaban : Dari gugus karbonil nya, PLA dari fermentasi. Sifat mekanik PLA masih kurang karena matrik dengan MCC tidak pakai perekat sehingga kurang di sifat mekaniknya.

