

SINTESIS DAN SIFAT *SWELLING* HIDROGEL BERBASIS KITOSAN TERIKAT SILANG FORMALDEHIDA DAN TRIPOLIFOSFAT

SYNTHESIS AND SWELLING PROPERTIES OF CHITOSAN-BASED HYDROGELS CROSSLINKED FORMALDEHYDE AND TRIPOLYPHOSPHATE

Fadilah Ramadhani*, Subur P. Pasaribu, Aman Sentosa Panggabean

Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Mulawarman, Samarinda

Jalan Barong Tongkok No. 4 Kampus Gunung Kelua Samarinda, Kalimantan Timur

*Corresponding Author: ramadhanifadilah20@gmail.com

Diterbitkan: 30 Oktober 2023

ABSTRACT

Hydrogel is a hydrophilic polymer network that can experience swelling with the ability to absorb and retain large amounts of liquid without decomposing and is widely applied in the fields of health, environment and agriculture. The swelling properties of hydrogels are influenced by the type of tissue and the density of crosslinks that form it. In this study the hydrogel was prepared by stirring a 2% chitosan solution (w/v) as much as 7 mL with 3 ml of formaldehyde-tripolyphosphate crosslinking mixture at variations of 3:0, 2:1, 1:1, 1:2 and 0:3 (v/v) at room temperature and swelling tests were carried out by immersing each hydrogel produced in aquades for a span of 24 hours at the same temperature. Based on the observations, the gel formation time was 420, 97, 84, 75 and 58 minutes respectively which showed the lower the chitosan concentration and the higher the tripolyphosphate, the faster the gel formation process. Then the degree of consecutive swelling was 581.43; 78,23; 75,17; 48.85 and 20.97% (w/w) indicate that covalent cross-networks formed by amine groups on chitosan with aldehyde groups on formaldehyde are more stable and more difficult to degrade than physical cross-networks formed by groups on chitosan and tripolyphosphates.

Keywords: Hydrogel, Crosslinking, Chitosan-tripolyphosphate, Degree of swelling.

ABSTRAK

Hidrogel merupakan jaringan polimer hidrofilik yang dapat mengalami *swelling* dengan kemampuan menyerap serta mempertahankan cairan dalam jumlah yang besar tanpa terurai dan banyak diaplikasikan dalam bidang kesehatan, lingkungan dan pertanian. Sifat *swelling* hidrogel dipengaruhi oleh jenis jaringan dan kepadatan ikatan silang yang membentuknya. Pada penelitian ini hidrogel dipreparasi melalui pengadukan larutan kitosan 2% (b/v) sebanyak 7 mL dengan 3 ml campuran pengikat silang formaldehida-tripolifosfat pada variasi 3:0, 2:1, 1:1, 1:2 dan 0:3 (v/v) pada suhu kamar dan uji *swelling* dilakukan dengan merendam masing-masing hidrogel yang dihasilkan dalam akuades selama rentang waktu 24 jam pada suhu yang sama. Berdasarkan hasil pengamatan, waktu pembentukan gel berturut-turut adalah 420, 97, 84, 75 dan 58 menit yang menunjukkan semakin rendah konsentrasi kitosan dan semakin tinggi tripolifosfat maka proses pembentukan gelnya semakin cepat. Kemudian derajat *swelling* berturut-turut adalah 581,43; 78,23; 75,17; 48,85 dan 20,97 % (b/b) mengindikasikan bahwa jaringan silang kovalen yang dibentuk oleh gugus amina pada kitosan dengan gugus aldehid pada formaldehida lebih stabil dan lebih sulit terdegradasi dibandingkan dengan jaringan silang fisika yang dibentuk oleh gugus yang terdapat pada kitosan dan tripolifosfat.

Kata kunci: Hidrogel, Pengikat silang, Kitosan-tripolifosfat, Derajat *swelling*.

PENDAHULUAN

Hidrogel adalah jaringan polimer hidrofilik tiga dimensi yang saling terikat silang

This is an open-access article under the [CC-BY-SA](https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/) license.



dan dapat menyerap air. Jaringan atau strukturnya dapat terbentuk secara kimia atau fisik. Hidrogel memiliki kemampuan untuk menyerap sejumlah besar cairan dan menjaga cairan di dalam strukturnya. Karena sifatnya yang unik, penelitian hidrogel meningkat secara signifikan dalam beberapa tahun terakhir untuk diterapkan di beberapa bidang, yaitu medis, farmasi, kimia, kemasan makanan, industri kertas, holtikultura, dan pengeboran minyak [1].

Material polimer untuk penyusun hidrogel harus dapat mengembang (*swell*) dan mempertahankan fraksi air pada strukturnya, namun tidak larut dalam air. Kitosan merupakan suatu polisakarida hasil deasetilasi kitin yang dapat membentuk hidrogel superabsorben melalui ikatan silang baik secara kovalen maupun nonkovalen [2]. Kitosan memiliki batasan tertentu untuk digunakan dalam rekayasa jaringan. Keterbatasan ini dapat diatasi dengan modifikasi kimia. Dengan demikian, hidrogel kitosan yang dimodifikasi dengan ikatan silang telah menjadi hal yang penting dalam penelitian saat ini tentang sistem rekayasa jaringan. Modifikasi kitosan dapat meningkatkan sifat inheren polimer yang meliputi biokompatibilitas, keserbagunaan kimiawi, biodegradabilitas dan toksisitas rendah. Modifikasi ini dapat disesuaikan untuk aplikasi tertentu [3].

Tuljannah (2021) menyatakan bahwa ikatan silang yang sebenarnya dapat diselesaikan dengan memanfaatkan interaksi ikatan kovalen, interaksi ikatan hidrogen dan interaksi ionic [4]. Formaldehida, adalah contoh zat pengikat silang yang dapat berikatan silang dengan kitosan. sering digunakan sebagai agen pengikat silang karena biaya rendah dan aksesibilitasnya. Sementara itu, polianion yang dapat dijadikan sebagai pengikat silang antara lain Sodium Tripolifosfat [5].

Pada penelitian ini akan dilakukan sintesis hidrogel kitosan yang terikat silang dengan formaldehida dan tripolifosfat untuk membandingkan efisiensi pengikatan silang yang dicapai oleh formaldehida dan tripolifosfat terhadap kitosan serta menganalisis sifat *swelling* hidrogel yang dihasilkan.

Metode Penelitian

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia Organik FMIPA Univeristas Mulawarman. Penelitian ini terdiri dari beberapa tahap yang meliputi tahap Sintesis Hidrogel Kitosan Terikat silang Formaldehida dan Tripolifosfat lalu masuk ke tahap Uji Swelling.

Alat

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas ukur, gelas beaker, pipet tetes, batang pengaduk, corong kaca, *hot plate*, termometer, labu ukur, spatula, oven, cawan petri, neraca analitik, tiang statif, pipet volume, bulp, desikator, *magnetic stirrer*.

Bahan

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah Kitosan murni, akuades, formaldehida, sodium tripolifosfat (teknis), asam asetat glasial, kertas saring, aluminium foil, plastic wrap, silica gel.

Prosedur Penelitian

Sintesis Hidrogel Kitosan-Formaldehida-Tripolifosfat

Merujuk pada penelitian yang dilakukan oleh Medellín-Castillo, *et al.*, (2021) dan dengan modifikasi pada konsentrasi dan fraksi pengikat silang, hidrogel akan disintesis dengan proses gelasi kitosan dalam 2% (v/v) asam asetat glasial. Dimana komposisi pengikat silang pada fraksi volume Formaldehida/TPP masing-masing 3/0, 2/1, 1,5/1,5, 1/2 dan 0/3 dengan volume total 10 mL yang terdiri dari 7 mL larutan kitosan 2% (b/v) dan 3 mL fraksi agen pengikat silang. Mula-mula larutan pengikat silang ditambahkan tetes demi tetes ke dalam larutan kitosan dan dihomogenkan menggunakan *magnetic stirrer* dengan memperhatikan *gelling time* atau waktu pembentukan gel menggunakan *stopwatch*. Selanjutnya bahan yang terbentuk dituang dan diletakkan di atas wadah yang telah dilapisi aluminium foil. Gel basah dikeringkan pada suhu 30°C selama 24 jam menggunakan oven. Setelah itu, hidrogel yang telah kering ditimbang untuk mengetahui massanya [5].

Uji Swelling

Merujuk pada penelitian yang dilakukan oleh Sugihartono, *et al.*, (2020) dalam pengukuran daya serap air yang bertujuan untuk menentukan kapasitas penyerapan hidrogel, sampel hidrogel komposit direndam dalam sejumlah besar air suling dan kenaikan beratnya dipantau sampai kesetimbangan tercapai yaitu sekitar 24 jam. Sebelum ditimbang, pada sampel hidrogel yang telah bengkak, kelebihan air pada permukaannya akan dikeringkan menggunakan tisu. Daya serap air dinyatakan dalam rasio *swelling* (S_w) didefinisikan dengan persamaan [6]:

$$S_w = (W_s - W_d) / W_d$$

Keterangan:

W_s = berat hidrogel komposit yang bengkak pada kseimbangan

W_d = berat hidrogel komposit dalam keadaan kering

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Hidrogel Kitosan-Formaldehida-Tripolifosfat

Penelitian ini dilakukan untuk menghasilkan suatu hidrogel yang memiliki stabilitas fisik dan kimia yang baik dengan menambahkan zat pengikat silang formaldehida dan tripolifosfat. Penambahan zat pengikat silang pada kitosan bertujuan untuk membentuk jaringan tiga dimensi dalam hidrogel kitosan. Hasil proses pembuatan hidrogel kitosan yang terikat silang formaldehida dan tripolifosfat ditampilkan pada **tabel 1**.

Berdasarkan hasil yang telah diperoleh pada **Tabel 1**, waktu pengadukan berturut-turut

yaitu 420 menit, 97 menit, 84 menit, 75 menit dan 58 menit, dimana waktu pengadukan semakin cepat dengan berkurangnya formaldehida dan bertambahnya tripolifosfat. Hal ini terjadi karena pada kitosan dan formaldehida memerlukan reaksi kimia yang melibatkan pemecahan dan pembentukan ikatan kovalen antara gugus amina pada kitosan dan gugus aldehyd pada formaldehida. Proses ini cenderung memerlukan waktu yang lebih lama karena melibatkan perubahan struktur melalui pembentukan ikatan kovalen yang lebih kompleks. Sedangkan pada kitosan dan tripolifosfat cenderung lebih cepat karena terjadi melalui interaksi elektrostatik yang relatif kuat. Gugus amina pada kitosan dan gugus fosfat pada tripolifosfat memiliki muatan listrik berlawanan yang memungkinkan terjadinya interaksi secara cepat.

Tabel 1. Pembuatan Hidrogel Kitosan-Formaldehida-Tripolifosfat

No	Variasi (F:STPP)	Konsentrasi Kitosan (b/v)	Konsentrasi STPP (b/v)	Konsentrasi Formaldehida (v/v)	Waktu Pengadukan	Massa Awal (gram)	Massa setelah dioven (gram)
1	3:0	2%	5%	5%	7 jam	9,3172	2,3725
2	2:1	2%	5%	5%	1 jam 37 menit	8,4138	2,4135
3	1:1	2%	5%	5%	1 jam 24 menit	8,4459	1,7842
4	1:2	2%	5%	5%	1 jam 15 menit	8,6474	1,5604
5	0:3	2%	5%	5%	58 menit	9.1637	1,5370

Uji Swelling

Uji *Swelling* dilakukan untuk mengetahui kemampuan dari hidrogel saat mengembang untuk dapat menyerap . Uji ini dilakukan dengan cara merendam hidrogel yang telah terbentuk ke dalam akuades. Akuades digunakan sebagai media *swelling* karena merupakan medium yang stabil secara komposisi dan juga akuades memiliki pH netral yang berarti tidak ada pengaruh pH yang signifikan pada hidrogel sehingga penggunaan akuades membantu memastikan bahwa pengukuran *swelling* hidrogel lebih terfokus pada pengaruh kitosan, formaldehida dan tripolifosfat. Berikut adalah hasil pengamatan Uji *Swelling* dari Hidrogel Kitosan terikat silang formaldehida dan

tripolifosfat yang disajikan pada **Tabel 2**. dan **Gambar 1**.

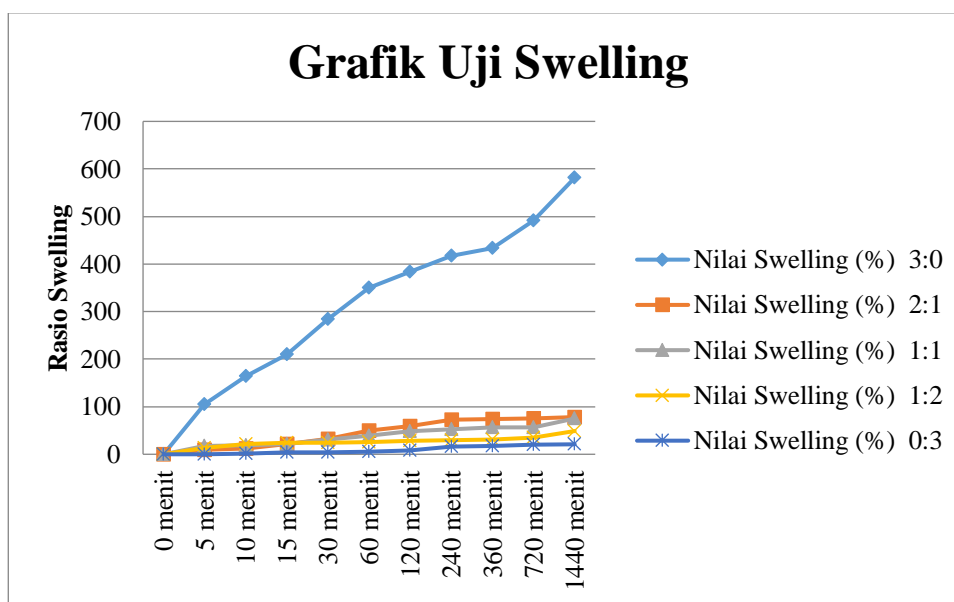
Berdasarkan **Gambar 1** dapat dilihat bahwa terdapat kenaikan nilai rasio *swelling*. Hidrogel dengan fraksi pengikat silang formaldehida:tripolifosfat 3:0 memiliki nilai rasio *swelling* paling tinggi dengan nilai 581,43% , fraksi pengikat silang 2:1 sebesar 78,23%, fraksi pengikat silang 1:1 sebesar 75,17%, fraksi pengikat silang 1:2 sebesar 48,85% dan fraksi pengikat silang 0:3 sebesar 20,97%. Dari hasil tersebut dapat disimpulkan bahwa terdapat penurunan nilai *swelling* seiring dengan penurunan jumlah formaldehida dalam campuran. Ikatan silang formaldehida cenderung lebih kuat daripada ikatan silang antara kitosan dan

tripolifosfat. Ikatan silang yang kuat dapat memberikan kekuatan struktural yang lebih baik dan memungkinkan menahan tekanan yang lebih tinggi untuk hidrogel menyerap air. Sedangkan pada interaksi antara kitosan dan tripolifosfat yang membentuk ikatan ionik akan menghasilkan

interaksi tambahan pada hidrogel kitosan terikat silang formaldehid dan tripolifosfat, sehingga nilai swelling yang diperoleh lebih rendah daripada hidrogel kitosan yang hanya terikat silang oleh formaldehida.

Tabel 2. Uji Swelling

No	Waktu (Menit)	Nilai Swelling (%)				
		3:0	2:1	1:1	1:2	0:3
1	0	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
2	5	105.58	10.05	17.48	13.06	0.65
3	10	164.19	11.86	18.30	22.01	1.13
4	15	210.64	21.82	21.21	24.06	3.63
5	30	283.47	31.86	30.77	24.55	4.44
6	60	349.61	50.24	38.69	26.12	6.05
7	120	383.26	59.27	48.48	28.30	7.58
8	240	417.46	72.63	52.33	29.87	15.65
9	360	433.67	73.77	56.29	30.35	17.98
10	12 jam	491.81	75.97	57.11	35.43	19.84
11	24 jam	581.43	78.23	75.17	48.85	20.97



Gambar 1. Grafik Uji Swelling

KESIMPULAN

Sintesis hidrogel kitosan terikat silang formaldehid dan tripolifosfat telah berhasil dilakukan. Berdasarkan hasil dari waktu pembentukan dapat disimpulkan bahwa semakin berkurangnya formaldehida maka waktu pembentukan semakin cepat dan dari hasil uji swelling yang telah diperoleh

menginterpretasikan bahwa kekuatan hidrogel dalam menyerap cairan semakin menurun dengan berkurangnya formaldehida dalam campuran. Hal ini menandakan bahwa ikatan yang terbentuk antara gugus amina dengan gugus karbonil pada formaldehid merupakan ikatan silang yang kuat sehingga memungkinkan

hidrogel untuk menyerap dan mempertahankan air dengan baik.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada bapak Dr. Subur P. Pasaribu, M.Si dan Bapak Prof. Dr. Aman Sentosa Panggabean, M.Si yang telah membimbing dalam menyelesaikan tulisan ini, serta kepada semua pihak yang telah memberikan dukungan baik berupa moral maupun materi.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Budianto, E., Muthoharoh, S. P., & Nizardo, N. M. (2015). Effect of Crosslinking Agents, pH and Temperature on Swelling Behavior of Cross-linked Chitosan Hydrogel. In *Asian Journal of Applied Sciences*. www.ajouronline.com
- [2] Wivanius, N. dan Budianto, E. (2015). Sintesis dan Karakterisasi Hidrogel Superabsorben Kitosan Poli(N-Vinilkaprolaktam) (Pnvc1) Dengan Metode Full Ipn (*Interpenetrating Polymer Network*). *Pharm Sci Resi*, 2 (3): 152-168
- [3] OU, A., & BO, I. (2017). Chitosan Hydrogels and their Glutaraldehyde-Crosslinked Counterparts as Potential Drug Release and Tissue Engineering Systems - Synthesis, Characterization, Swelling Kinetics and Mechanism. *Journal of Physical Chemistry & Biophysics*, 07(03). <https://doi.org/10.4172/2161-0398.1000256>
- [4] Tuljannah, N. (2021). *Pembuatan Hidrogel Dari Tongkol Jagung (Zea mays L.) Sebagai Absorben Logam Berat Cu dan Fe*. (Skripsi). Universitas Islam Negeri Alauddin Makassar.
- [5] Medellín-Castillo, N. A., Isaacs-Páez, E. D., Rodríguez-Méndez, I., González-García, R., Labrada-Delgado, G. J., Aragón-Piña, A., & García-Arreola, M. E. (2021). Formaldehyde and tripolyphosphate crosslinked chitosan hydrogels: Synthesis, characterization and modeling. *International Journal of Biological Macromolecules*, 183(February), 2293–2304. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2021.06.020>
- [6] Sugihartono, S., Rahmawati, D., & Priatni, A. (2020). Kemampuan hidrogel komposit berbasis produk samping industri penyamakan kulit dalam menyerap air dan larutan garam. *Majalah Kulit, Karet, Dan Plastik*, 36(1), 35. <https://doi.org/10.20543/mkpk.v36i1.6097>