

SKRIPSI

**UTILIZATION OF GREEN CROSSLINKER AS A SUBSTITUTE
FOR EPICHLOROHYDRIN IN THE PREPARATION OF
CELLULOSE HYDROGEL**



Diajukan oleh :

Maria Melania Golor NRP: 5203016042

Dessy Rosma NRP: 5203016051

**JURUSAN TEKNIK KIMIA
FAKULTAS TEKNIK
UNIVERSITAS KATOLIK WIDYA MANDALA
SURABAYA
2019**

LEMBAR PENGESAHAN

Seminar **SKRIPSI** bagi mahasiswa tersebut di bawah ini:

Nama : Maria Melania Golor

NRP : 5203016042

telah diselenggarakan pada tanggal 29 Mei 2019, karena yang bersangkutan dapat dinyatakan telah memenuhi sebagian persyaratan kurikulum guna memperoleh gelar **Sarjana Teknik Jurusan Teknik Kimia**.

Surabaya, 11 Juni 2019

Pembimbing I

Shella P. Santoso, Ph.D
NIK. 521.17.0971

Pembimbing II

Maria Yuliana, Ph.D
NIK. 521.18.1010

Dewan Pengaji

Ketua

Wenny Irawaty, Ph.D
NIK. 521.97.0284

Sekretaris

Shella P. Santoso, Ph.D
NIK. 521.17.0971

Anggota

Suryadi Ismadji, Ph.D
NIK. 521.93.0198

Anggota

Sandy Budi H., Ph.D
NIK. 521.99.0401

Anggota

Maria Yuliana, Ph.D
NIK. 521.18.1010

Mengetahui



LEMBAR PENGESAHAN

Seminar **SKRIPSI** bagi mahasiswa tersebut di bawah ini:

Nama : Dassy Rosma

NRP : 5203016051

telah diselenggarakan pada tanggal 29 Mei 2019, karena yang bersangkutan dapat dinyatakan telah memenuhi sebagian persyaratan kurikulum guna memperoleh gelar **Sarjana Teknik Jurusan Teknik Kimia**.

Surabaya, 11 Juni 2019

Pembimbing I

Shella P. Santoso, Ph.D

NIK. 521.17.0971

Pembimbing II

Maria Yuliana, Ph.D

NIK. 521.18.1010

Dewan Penguji

Ketua

Wenny Irawaty, Ph.D

NIK. 521.97.0284

Sekretaris

Shella P. Santoso, Ph.D

NIK. 521.17.0971

Anggota

Suryadi Ismailji, Ph.D

NIK. 521.93.0198

Anggota

Sandy Budi H., Ph.D

NIK. 521.99.0401

Anggota

Maria Yuliana, Ph.D

NIK. 521.18.1010

Mengetahui



Fakultas Teknik
Dekan

Suryadi Ismailji, Ph.D

NIK. 521.93.0198



Jurusan Teknik Kimia
Ketua

Sandy Budi H., Ph.D

NIK. 521.99.0401

**LEMBAR PERNYATAAN PERSETUJUAN
PUBLIKASI KARYA ILMIAH**

Demi perkembangan ilmu pengetahuan, saya sebagai mahasiswa Unika Widya Mandala Surabaya:

Nama : Maria Melania Golor
NRP : 5203016042

Menyetujui skripsi/karya ilmiah saya :

Judul :

Utilization of Green Crosslinker as A Substitute for Epichlorohydrin in the Preparation of Cellulose Hydrogel

untuk dipublikasikan/ditampilkan di internet atau media lain (Digital library Perpustakaan Unika Widya Mandala Surabaya) untuk kepentingan akademik sebatas dengan Undang-undang Hak Cipta.

Demikian pernyataan persetujuan publikasi karya ilmiah ini saya buat dengan sebenarnya.

Surabaya, 11 Juni 2019

Yang menyatakan,



Maria Melania Golor
5203016042

**LEMBAR PERNYATAAN PERSETUJUAN
PUBLIKASI KARYA ILMIAH**

Demi perkembangan ilmu pengetahuan, saya sebagai mahasiswa Unika Widya Mandala Surabaya:

Nama : Dassy Rosma
NRP : 5203016051

Menyetujui skripsi/karya ilmiah saya :

Judul :

Utilization of Green Crosslinker as A Substitute for Epichlorohydrin in the Preparation of Cellulose Hydrogel

untuk dipublikasikan/ditampilkan di internet atau media lain (Digital library Perpustakaan Unika Widya Mandala Surabaya) untuk kepentingan akademik sebatas dengan Undang-undang Hak Cipta.

Demikian pernyataan persetujuan publikasi karya ilmiah ini saya buat dengan sebenarnya.

Surabaya, 11 Juni 2019

Yang menyatakan,



Dassy Rosma
5203016051

LEMBAR PERNYATAAN

Dengan ini saya menyatakan bahwa skripsi ini benar-benar merupakan hasil karya saya sendiri dan bukan merupakan hasil karya orang lain, baik sebagian maupun seluruhnya, kecuali dinyatakan dalam teks. Seandainya diketahui bahwa skripsi ini ternyata merupakan hasil karya orang lain, maka saya sadar dan menerima konsekuensi bahwa skripsi ini tidak dapat digunakan sebagai syarat untuk memperoleh gelar **Sarjana Teknik**.

Surabaya, 11 Juni 2019
Mahasiswa,



LEMBAR PERNYATAAN

Dengan ini saya menyatakan bahwa skripsi ini benar-benar merupakan hasil karya saya sendiri dan bukan merupakan hasil karya orang lain, baik sebagian maupun seluruhnya, kecuali dinyatakan dalam teks. Seandainya diketahui bahwa skripsi ini ternyata merupakan hasil karya orang lain, maka saya sadar dan menerima konsekuensi bahwa skripsi ini tidak dapat digunakan sebagai syarat untuk memperoleh gelar **Sarjana Teknik**.

Surabaya, 11 Juni 2019

Mahasiswa,



Dessy Rosma

5203016051

KATA PENGANTAR

Puji syukur kepada Tuhan Yang Maha Esa atas segala rahmat dan karunia-Nya yang telah memberikan hikmat kepada penulis sehingga berhasil menyelesaikan skripsi yang berjudul “Utilization of Green Crosslinker as A Substitute for Epichlorohydrin in the Preparation Of Cellulose Hydrogel” tepat waktu dan sesuai dengan apa yang diharapkan.

Terselesaikannya skripsi ini tentunya tak lepas dari bantuan serta dukungan baik secara materi maupun moral dari banyak pihak. Maka dari itu tak salah kiranya penulis mengucapkan banyak terima kasih dan penghargaan kepada:

1. Ibu Shella P. Santoso, Ph.D. dan Ibu Maria Yuliana, Ph.D. selaku pembimbing skripsi yang telah memberikan arahan, saran, kritik, waktu dan semangat selama penyusunan skripsi;
2. Ibu Wenny Irawaty, Ph.D., Bapak Suryadi Ismadji, Ph.D. dan Bapak Sandy Budi H., Ph.D. selaku penguji atas saran dan kritik yang membangun;
3. Ketua Laboratorium atas izinnya untuk menggunakan fasilitas sarana-prasarana laboratorium Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Katolik Widya Mandala Surabaya;
4. Para Laboran atas asistensinya dalam menyediakan kebutuhan penelitian meliputi bahan kimia serta alat gelas dan alat instrumen;
5. Bapak Suryadi Ismadji, Ph.D selaku Dekan Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Katolik Widya Mandala Surabaya;
6. Ayah dan Ibu tercinta yang senantiasa mendukung selama penyusunan skripsi;
7. Rekan-rekan mahasiswa atas dukungan, semangat dan masukan yang membangun selama penyusunan skripsi;

8. Semua pihak yang tidak dapat penulis sebut satu persatu yang telah membantu dalam penyusunan skripsi ini.

Akhir kata, penulis berharap agar skripsi ini dapat memberikan kontribusi yang berarti bagi ilmu pengetahuan serta bermanfaat bagi banyak pihak. Penulis menyadari bahwa masih banyak kekurangan dalam penulisan skripsi ini baik dalam hal materi serta teknik penyajiannya. Oleh karena itu kritik dan saran yang membangun sangat penulis harapkan.

Terima kasih.
Surabaya, 11 Juni 2019

Penulis

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN	ii
LEMBAR PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI	
KARYA ILMIAH.....	iv
LEMBAR PERNYATAAN.....	vi
KATA PENGANTAR	viii
DAFTAR ISI	x
DAFTAR GAMBAR.....	xii
DAFTAR TABEL	xiii
ABSTRAK.....	xiv
ABSTRACT	xv
BAB I. PENDAHULUAN.....	1
I.1. Latar Belakang	1
I.2. Perumusan masalah	2
I.3. Tujuan Penelitian.....	2
I.4. Batasan Masalah.....	3
BAB II. TINJAUAN PUSTAKA	4
II.1. Hidrojel	4
II.2. Adsorpsi	9
II.3. Metilen Biru (MB)	12
II.4. Aplikasi Hidrojel.....	14
BAB III. METODE PENELITIAN	15
III.1. Rancangan Penelitian.....	15
III.2. Bahan	17
III.3. Alat	17
III.4. Variabel Penelitian.....	18
III.5. Prosedur Penelitian	19
III.6. Karakterisasi	21
III.7. Analisis	21
BAB IV. METODE PENELITIAN	22
IV.1. Delignifikasi Ampas Tebu.....	22
IV.2. Karakterisasi Hidrojel.....	23
IV.3. Daya Tampung Air	31
IV.4. Adsorpsi Metilen Biru	32
BAB V. KESIMPULAN DAN SARAN	40
V.1. Kesimpulan	40
V.2. Saran	40
Daftar Pustaka.....	41

LAMPIRAN A	47
LAMPIRAN B	49
LAMPIRAN C	52
LAMPIRAN D	55
LAMPIRAN E	57
LAMPIRAN F	58
LAMPIRAN G	65

DAFTAR GAMBAR

Gambar II.1(a) Unit selulosa berulang; (b) Struktur turunan selulosa	5
Gambar II.2 Mekanisme <i>Crosslinking</i> Selulosa dan Turunannya dengan Asam Sitrat.....	7
Gambar III.1 Tahap Proses Delignifikasi Lignoselulosa	15
Gambar III.2 Tahap Pembuatan Hidrojel Berbasis Selulosa	16
Gambar IV.1 SEM Hidrojel Selulosa Ampas Tebu.....	28
Gambar IV.2 XRD Hidrojel S-AT dan S-AT	29
Gambar IV.3 Spektrum FTIR hidrojel S-AT (hitam) dan hidrojel S-AT-CMC (merah)	30
Gambar IV.4 Mekanisme Adsorpsi Metilen Biru	32
Gambar IV.5 Kinetika Orde Pertama Semu.....	34
Gambar IV.6 Kinetika Orde Kedua Semu	34
Gambar IV.7 Isoterm Adsorpsi Model Freundlich	36
Gambar IV.8 Isoterm Adsorpsi Model Langmuir.....	36
Gambar E.1 Hubungan Antara Konsentrasi MB dengan Absorbansi Pada λ max (662,5 nm).....	57

DAFTAR TABEL

Tabel II.1 <i>Crosslinking</i> Selulosa dan Turunan Menggunakan Asam Sitrat	8
Tabel II.2 Aplikasi Hidrojel untuk Penyerapan Zat Warna Metilen Biru	13
Tabel IV.1 Hasil Metode Chesson	22
Tabel IV.2 Pengaruh Massa Selulosa terhadap Ketahanan Mekanik dan Tekstur Hidrojel dengan Kadar Asam Sitrat 20%	24
Tabel IV.3 Pengaruh Konsentrasi Asam Sitrat terhadap Ketahanan Mekanik dengan Kadar Selulosa 6% (%b)	25
Tabel IV.4 Pengaruh Konsentrasi CMC terhadap Tingkat Kekerasan Hidrojel dengan Kadar Selulosa 6% (%b) dan Kadar Asam Sitrat 40% (%b)	27
Tabel IV.5 Parameter Kinetika Adsorpsi	33
Tabel IV.6 Parameter Persamaan Freundlich	35
Tabel IV.7 Parameter Persamaan Langmuir	35
Tabel IV.8 Kapasitas Adsorpsi Maksimum (q_{\max}) dari Beberapa Adsorben Berbasis Selulosa untuk Penghilangan Zat Warna Metilen Biru pada Kondisi Operasi Tertentu	37
Tabel IV.9 Parameter Termodinamika Untuk Adsorpsi Metilen Biru pada Hidrojel Berbasis Selulosa	39
Tabel E.1 Hubungan antara Konsentrasi MB dengan Absorbansi pada λ max (662,5 nm)	57
Tabel F.1 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 50$ ppm Percobaan 1	58
Tabel F.2 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 50$ ppm Percobaan 2	59
Tabel F.3 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 100$ ppm Percobaan 1	60
Tabel F.4 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 100$ ppm Percobaan 2	61
Tabel F.5 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 200$ ppm Percobaan 1	62
Tabel F.6 Data Kinetika Adsorpsi $C_0 = 200$ ppm Percobaan 2	63
Table F.7 Data Isoterm Adsorpsi $T = 30^\circ\text{C}$	63
Table F.8 Data Isoterm Adsorpsi $T = 50^\circ\text{C}$	64
Table F.9 Data Isoterm Adsorpsi $T = 70^\circ\text{C}$	64
Table G.1 Data Termodinamika Adsorpsi	65
Table G.2 Slope dan Intercept	66

ABSTRAK

Hidrojel selulosa merupakan material yang memiliki banyak aplikasi di berbagai bidang, seperti biomedis, pengolahan air, makanan, dan farmasi. Epiklorohidrin merupakan agen pentaut silang yang paling umum digunakan dalam pembuatan hidrojel selulosa, akan tetapi agen ini memiliki sifat karsinogenik. Dalam penelitian ini, epiklorohidrin disubstitusi dengan agen pentaut silang (*crosslinker*) yang lebih “hijau” yaitu asam sitrat. Hidrojel berbasis selulosa disintesis dari selulosa ampas tebu dan *carboxymethyl cellulose* (CMC) yang direaksikan dengan asam sitrat (AS) sebagai *crosslinker* di dalam pelarut NaOH/Urea/Air (7/12/81 %b). Rasio antara selulosa/CMC/AS yang dapat menghasilkan hidrojel dengan ketahanan mekanik yang terbaik ditentukan. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa semakin tinggi kadar selulosa/CMC/AS maka hidrojel yang terbentuk memiliki ketahanan mekanik yang lebih baik. Didapatkan perbandingan selulosa/CMC/AS (6/2/40 %b) memberikan ketahanan mekanik hidrojel yang paling baik yang ditandai dengan jarak kedalaman penetrasi 11,6 mm, berdasarkan pembacaan penetrometer. Karakterisasi morfologi, gugus fungsional, dan pola kristalinitas dari hidrojel ditentukan dengan menggunakan analisis *scanning electron microscopy* (SEM), *fourier transform infrared* (FTIR) *spectroscopy*, dan *x-ray diffraction*, secara berturut-turut.

Selanjutnya, hidrojel yang dihasilkan diuji potensinya untuk diaplikasikan dalam pengolahan air. Hidrojel dicoba sebagai agen adsorpsi untuk metilen biru (MB). Adsorpsi MB pada hidrojel ini mengikuti model kinetika orde pertama semu sedangkan isoterm adsorpsinya mengikuti model Freundlich; yang menjelaskan bahwa adsorpsi terjadi pada permukaan absorben yang heterogen. Pada isoterm adsorpsi, Q_e mengalami kenaikan seiring peningkatan suhu. Didapatkan bahwa pada suhu 70°C kapasitas adsorpsi mencapai maksimum yaitu sebesar 27,38 mg MB/g hidrojel.

ABSTRACT

Cellulose hydrogel is a material that has many applications in various fields, such as biomedicine, water treatment, food, and pharmacy. Epichlorohydrin is the most commonly used cross-binding agent to prepare cellulose hydrogels however this agent is carcinogenic. In this study, epichlorohydrin was replaced with a more "green" crosslinking agent, namely citric acid. Cellulose-based hydrogel was synthesized from sugarcane bagasse and carboxymethyl cellulose (CMC) which was reacted with citric acid (CA) as crosslinker in NaOH/Urea/Water solvents (7/12/81 wt%). The ratio between cellulose/CMC/CA which provides the best mechanical resistance is determined. The results obtained showed that the higher the level of cellulose/CMC/CA, the hydrogel formed had better mechanical resistance. Ratio between cellulose/CMC/CA of 6/2/40 wt% provided the best mechanical resistance to hydrogel characterized by a penetration depth of 11.6 mm, based on the penetrometer reading. Morphological characterization, functional groups, and patterns of crystallinity were determined using analysis of scanning electron microscopy (SEM), fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy, and X-ray diffraction, respectively.

Furthermore, the hydrogel is tested for its potential to be applied in water treatment. Hydrogel was tried as an adsorption agent for methylene blue (MB). The adsorption of MB on this hydrogel follows the first order kinetics model, while the adsorption isotherm follows the Freundlich model; which explains that adsorption occurs on heterogeneous absorbent surfaces. In the adsorption isotherm, Q_e increases with increasing temperature. It was found that at 70 °C the adsorption capacity reached a maximum of 27.38 mg MB / g of hydrogel.