

Mikroselulosa dari Serat Kulit Pinang sebagai Bahan Pengisi pada Bioplastik

Microcellulose from Betel Husk Fiber as Filler in Bioplastic

Ratmi Kuswariyah, Berlian Sitorus^{*}, Adhitiyawarman, Antonius
Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Tanjungpura

*E-mail: berlian.sitorus@chemistry.untan.ac.id

ABSTRACT

Betel nut husk fiber has a reasonably high cellulose content. Meanwhile, bioplastics nowadays are mostly made of Poly Vinyl Alcohol (PVA), with one of its limitations being tensile strength and other properties regarding mechanical. Thus, this study aims to isolate microcellulose from areca nut fiber and use the fiber as a filler in bioplastic, where cellulose is combined with PVA. The intention is to understand the effect of adding microcellulose from betel nut fibers on the properties, including the biodegradability of PVA-based bioplastic films. This research has three steps: isolating cellulose from betel nut peel fibers by delignification, pulping, and bleaching. The next step is hydrolysis to obtain microcellulose. The last is the preparation of bioplastic films using the solution casting method, with five different ratios of microcellulose content in the bioplastic. The cellulose characterization from FTIR spectra shows the absorption of several peaks, such as O-H, C-H, and C-O functional groups. The mechanical testing results on the variation of bioplastic show that the bioplastic with the best characteristics was PL₅, which has the highest microcellulose content, 8 MPa and 10.2% for tensile strength and elongation, respectively. The biodegradation test for bioplastic variation (PL₅) was 82% within eight weeks, while in Indonesian National Standard (SNI) number 7188.7:2016, it is 100% within 60 days.

Keywords: Betel nut husk fiber, Bioplastic, Cellulose, Delignification, Microcellulose.

PENDAHULUAN

Saat ini, bahan yang umum digunakan dalam industri plastik adalah polimer yang dihasilkan dari senyawa turunan minyak bumi karena ketersediaannya dan fungsionalitasnya. Terdapat beberapa masalah penting terkait dengan penggunaan polimer tersebut, seperti bahan baku yang tidak dapat diperbaharui, biaya pembuatan yang tinggi dan potensi polusi yang dapat mereka hasilkan. Selain itu, waktu degradasi yang sangat lama dan akumulasi residu yang dihasilkan dari bahan plastik jenis ini juga merupakan penyebab utama pencemaran lingkungan (Hahladakis *et al.*, 2018). Karena itu diharapkan terdapat suatu bahan polimer generasi baru untuk mengurangi ketergantungan industri plastik pada minyak bumi, sehingga menciptakan alternatif bahan yang penggunaannya lebih berkelanjutan (Rujnić-Sokele & Pilipović, 2017; Thakur *et al.*, 2014). Selain itu biaya pembuatan plastik biodegradable juga seharusnya lebih murah karena menggunakan bahan dari alam dan bisa diperbaharui (Flury & Narayan, 2021).

Poli Vinil Alkohol (PVA) merupakan material yang umum digunakan dalam pembuatan bahan kemasan yang dapat didegradasi oleh mikroorganisme. Hal ini dikarenakan PVA memiliki sifat antara lain: mudah dibentuk menjadi *film*, tidak

membahayakan kesehatan dan dapat didegradasi oleh mikroorganisme. Selain itu, PVA juga bersifat kompatibel jika kepadanya ditambahkan bahan pengisi seperti selulosa. Penambahan ini akan menghasilkan komposit dengan sifat mekanis yang mirip dengan palstik konvensional dan ramah lingkungan (Haque & Naebe, 2021).

Alternatif bahan yang dapat digunakan sebagai penguat dalam komposit adalah serat alam seperti selulosa, yang dapat diperoleh dari tumbuhan. Material komposit yang mengandung serat alam umumnya memiliki keunggulan seperti modulus dan kekuatan spesifik yang tinggi, dapat didaur ulang densitas kecil serta harga terjangkau (Dynanty & Mahyudin, 2018). Serat selulosa dapat digunakan dalam pembuatan komposit, karena mikro ataupun serat berukuran nano memiliki luas permukaan yang besar sehingga dapat terdistribusi secara merata dan mudah dikompositkan karena mobilitas molekulernya berubah. Komposit yang dihasilkan juga akan bersifat lebih fleksibel sehingga tahan akan panas dan listrik (Alashwal *et al.*, 2020).

Serat dari kulit buah pinang, merupakan serat alam yang dapat dimanfaatkan untuk mendapatkan bahan pengisi pada material komposit. Serat pinang mempunyai beberapa senyawa kimia seperti selulosa, hemiselulosa,

lignin, pektin dan protopertin (Kencanawati *et al.*, 2018). Serat pinang terdiri dari selulosa (35 - 68,5%), lignin (13 - 26%), pektin (1,5 - 3,6%), protopektin (1,5 - 2,1%). Tingginya kandungan selulosa dan ketersediaannya yang melimpah di alam, menyebabkan serat pinang berpotensi untuk dimanfaatkan sebagai *filler* pada material komposit. Pemilihan serat pinang sebagai penguat komposit karena memiliki keunggulan diantaranya densitas rendah, terbarukan, biaya yang murah, memiliki panjang serat sekitar 4 cm dimana nilai panjang seratnya lebih kecil daripada serat lain dan serat pinang mudah dan murah untuk didapatkan (Pratiwi *et al.*, 2017).

(Tamiogy *et al.*, 2019) telah melakukan fabrikasi bioplastik dengan memanfaatkan kulit buah pinang sebagai sumber selulosa sebagai bahan pengisi. Dalam penelitiannya tentang perubahan sifat mekanik dan biodegradabilitas komposit sebagai akibat dari perbedaan ukuran serat dari kulit buah pinang, (Dynanty & Mahyudin, 2018) memperoleh nilai kuat tarik optimum (11,02 MPa) ada pada serat dengan panjang 3 mm. Selain itu, juga diperoleh nilai modulus elastisitas optimum (134,52 MPa) ada pada serat dengan panjang 12 mm. Nilai regangan (10%) dan kuat impak optimum (0,0052 J/mm²) diperoleh pada serat dengan panjang 9 mm. Perbedaan penelitian yang pernah dilakukan yaitu pada pembuatan bioplastik dimana PVA dikompositkan dengan variasi selulosa dari serat kulit buah pinang.

Penelitian ini difokuskan untuk mendapatkan selulosa dalam ukuran mikro dan membuat film bioplastik dari gabungan PVA, pati, gliserol dan asam sitrat dengan mikroselulosa dari serat kulit buah pinang.

METODE

Selulosa diisolasi dari kulit pinang melalui delignifikasi, bleaching dan hidrolisis. Komposit dibuat berdasarkan metode *casting solution*, dimana larutan PVA dicampur dengan lima variasi konsentrasi selulosa dari serat kulit buah pinang (0%, 3%, 6%, 9% dan 12%) dan gliserol. Penelitian ini melakukan karakterisasi berupa kekuatan mekanik, gugus fungsi, kristalinitas dan morfologi.

Peralatan dan Bahan yang digunakan

Dalam penelitian ini, digunakan beberapa peralatan, diantaranya: ayakan, blender, batang pengaduk, cetakan, peralatan gelas laboratorium yang umum, *hotplate-stirrer*, neraca, oven, pipet ukur, peralatan untuk refluks, dan *centrifuge (Oregon)*. Instrumen yang digunakan untuk karakterisasi terdiri dari: *Fourier Transform Infra-red (FTIR)* dari Shimadzu IRPrestige-21, *Universal Testing Machine*, *X-ray Diffractometer (XRD)* spesifikasi Bruker D2 Phaser,

dan *Scanning Electron Microscope (SEM)*-Phenom ProX.

Kulit buah pinang berasal dari Desa Air Putih, Kabupaten Kubu Raya, Kalimantan Barat. Bahan-bahan kimia yang digunakan umumnya adalah produk dari Merck, yaitu: asam nitrat (HNO₃), gliserol, H₂O₂, asam klorida (HCl), natrium hidroksida (NaOH), natrium hipoklorit (NaClO), teknis, natrium nitrit (NaNO₂), natrium sulfat (Na₂SO₃), kecuali akuades, asam sitrat (Loba Chemie), PVA (Sigma Aldrich).

Isolasi dan pengujian kadar selulosa dari serat buah pinang

Sebanyak 37,5 gram serbuk serat kulit buah pinang, didelignifikasi menggunakan 500 mL larutan yang diperoleh dengan mencampurkan NaNO₂ sebanyak 10 mg ke dalam HNO₃ 3,5. Proses delignifikasi dilakukan pada temperatur 90°C selama 2 jam. Hasil delignifikasi tersebut kemudian disaring dan residu dibilas menggunakan akuades sampai netral. Proses delignifikasi dilanjutkan dengan menambahkan 350 mL larutan yang terdiri dari NaOH dan Na₂SO₃ masing-masing dengan konsentrasi 2% ke dalam residu selama 60 menit pada temperatur 50°C. Dilakukan penyaringan terhadap hasil delignifikasi, dan residu dibilas menggunakan akuades sampai netral. Residu yang telah netral tersebut selanjutnya dilakukan *bleaching* selama 30 menit menggunakan 125 mL NaOCl dengan konsentrasi ±1,75% suhu 70°C. Hasil *bleaching* kemudian disaring dan residu dibilas kembali menggunakan akuades hingga mencapai pH netral.

Pemurnian hasil *bleaching* untuk mendapatkan selulosa dilakukan melalui pemanasan selama 30 menit dalam 250 mL larutan NaOH 17,5% suhu 80°C, dilanjutkan dengan penyaringan dan penetralan. Kemudian ke dalam residu ditambahkan 10% H₂O₂ bersuhu 60°C, disaring kemudian dibilas hingga pH netral. Residu selanjutnya dipanaskan dalam oven temperatur 60°C sehingga diperoleh selulosa. Selulosa hasil isolasi kemudian dihidrolisis dengan 250 mL HCl 0,1 M sebanyak selama 1 jam. Selulosa didinginkan dan ditambahkan akuades sebanyak 25 mL dan suspensi yang terbentuk dilakukan sentrifugasi 20 menit dengan kecepatan 3.000 rpm.

Selulosa hasil hidrolisis kemudian diuji kadar hemiselulosa, selulosa dan ligninnya dengan prosedur sebagai berikut. Selulosa direfluks pada temperatur 100°C selama 2 jam, disaring dan dibilas hingga netral, kemudian residu dipanaskan pada temperatur 105°C sampai massa yang diperoleh konstan (**a**). Residu kering (**a**) direfluks pada temperatur 100°C selama 60 menit menggunakan 150 mL H₂SO₄ 1 N, disaring dan dinetralkan menggunakan akuades, dan kembali dikeringkan sampai massa yang diperoleh konstan (**b**). Residu kering (**b**) selanjutnya direndam selama 4 jam dalam 10 mL H₂SO₄ konsentrasi 72%. Tahapan selanjutnya ditambahkan H₂SO₄ konsentrasi 1 N sebanyak 150 mL dan dipanaskan 2 jam pada temperatur 100°C,

dilakukan penyaringan dan pencucian menggunakan akuades sampai netral. Residu selanjutnya dikeringkan sampai massa yang diperoleh konstan (c). Residu (c) kemudian keringkan di dalam tanur selama 6 jam temperatur 600°C (d).

$$\text{Kadar Hemiselulosa} = \frac{a - b}{\text{berat sampel}} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{Kadar Selulosa} = \frac{b - c}{\text{berat sampel}} \times 100 \quad (2)$$

$$\text{Kadar Lignin} = \frac{c - d}{\text{berat sampel}} \times 100 \quad (3)$$

Pembuatan Film Bioplastik

Prosedur pembuatan film bioplastik diadaptasi dari (Nugroho *et al.*, 2020) sebanyak 2,5 g PVA dilarutkan dalam 25 ml akuades bersuhu 90°C kemudian diaduk dengan magnetic stirrer. Pada gelas beaker yang terpisah, pati, asam sitrat dilarutkan dengan akuades sebanyak 25 mL dan ditambahkan 1 ml gliserol. Campuran ini ditambahkan ke dalam larutan PVA dan kembali diaduk selama ± 10 menit untuk memulai terjadinya crosslinking. Setelah itu, selulosa hasil hidrolisis ditambahkan ke keseluruhan campuran, dan diaduk ±50 menit sehingga diperoleh larutan kental. Campuran kemudian dituangkan secara merata ke atas permukaan kaca akrilik dengan metode casting. Film bioplastik dengan ketebalan ± 0,23 mm dan berukuran 20×25 cm cm, dilanjutkan dengan pengeringan selama 12 jam dalam oven suhu 50°C dan dikering-anginkan selama 72 jam.

Karakterisasi

Karakterisasi yang dilakukan dalam penelitian ini menggunakan instrumen FTIR, XRD dan SEM. Analisis FT-IR dilakukan pada bilangan gelombang 4.000-400 cm⁻¹, sedangkan analisis SEM dilakukan pada temperatur ruang dengan energi 100 keV, dimana sampel diletakkan di dalam film karbon yang ada di atas kisi tembaga. Analisis XRD dilakukan pada potensial listrik 40,0 kV dengan arus 40 mA dan menggunakan radiasi CuKα (λ = 1,54060 Å) serta rotasi sampel 5,000°/menit. Intensitas radiasi yang diukur berada pada 2θ dengan rentang 10-100°.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Bioplastik berbahan pengisi selulosa dari serat kulit buah pinang

Selulosa yang diperoleh dari serat kulit buah pinang dicampurkan dengan PVA yang berfungsi sebagai polimer, kemudian PVA-pati dicampurkan dengan gliserol yang berfungsi sebagai *plasticizer*, asam sitrat berfungsi sebagai pereaksi cross-linking (Atmaka & Lestariana, 2017). Variasi persentase massa selulosa dilakukan dalam campuran bioplastik menggunakan presentase massa selulosa yaitu 0% selulosa untuk variasi (PL₁), 3% selulosa untuk variasi (PL₂), 6% selulosa untuk variasi (PL₃), 9% selulosa untuk variasi (PL₄) dan 12% selulosa untuk variasi (PL₅). Adapun jumlah

PVA, pati, asam sitrat dan gliserol dibuat tetap, yakni 1g PVA; 2,5 g pati, 1,25 g asam sitrat dan gliserol sejumlah 1 g.

Pembuatan bioplastik dari serat kulit buah pinang ini menggunakan metode *solution casting*, semua bahan dicampurkan dan dilarutkan hingga homogen, larutan yang sudah tercampur dituangkan ke atas kaca akrilik dan dikeringkan dalam oven selama 12 jam, komposisi pembuatan bioplastik dapat dilihat pada Tabel 1. Bioplastik yang dihasilkan berbentuk lembaran tipis, lentur, berwarna bening dan memiliki ketebalan 0,23 mm.

Tabel 1. Variasi massa komponen dalam pembuatan bioplastik

| Variasi film | Selulosa (g) | % selulosa terhadap komposisi bioplastik |
|-----------------|--------------|--|
| PL ₁ | 0 | 0 |
| PL ₂ | 0,25 | 3 |
| PL ₃ | 0,5 | 6 |
| PL ₄ | 0,75 | 9 |
| PL ₅ | 1 | 12 |

Keterangan

PL₁: film bioplastik tanpa selulosa

PL₂: film bioplastik dengan massa selulosa 3%

PL₃: film bioplastik dengan massa selulosa 6%

PL₄: film bioplastik dengan massa selulosa 9%

PL₅: film bioplastik dengan massa selulosa 12%

Isolasi Mikroselulosa dari Serat Kulit Buah Pinang

Preparasi serat kulit dari buah pinang diawali oleh pemisahan serat dengan tempurung buah pinang dimana proses ini akan mendapatkan serat kulit buah pinang. Serat kulit buah pinang dicuci untuk menghilangkan pengotor di serat tersebut, kemudian serat dikering anginkan. Ukuran dari serat kulit buah pinang kemudian diperkecil untuk membuat luas permukaannya lebih besar. Kemudian serat yang sudah dipotong dioven pada suhu 105°C selama 24 jam untuk mengeringkannya dan selanjutnya ukuran serat diperkecil hingga menghasilkan menghasilkan serbuk dan dilakukan pengayakan menggunakan ayakan 80 mesh untuk membuat partikel yang dihasilkan memiliki keseragaman ukuran.

Serbuk serat kulit buah pinang kemudian dididignifikasi untuk menghilangkan kandungan lignin dan hemiselulosa menggunakan campuran HNO₃ 3,5% dan NaNO₂ dengan pemanasan. Lignin merupakan suatu zat fenolik yang tidak beraturan dan dengan adanya penambahan HNO₃ 3,5% dan NaNO₂ akan mengubah lignin menjadi

nitrolignin yang larut dalam air. Asam nitrat bertujuan untuk mengoksidasi dan menghidrolisis lignin sehingga mudah larut, berwarna kuning kecokelatan akibat pemutusan gugus kromofor pada lignin dan hemiselulosa (Khairunnisah, 2019). Delignifikasi dilakukan selama 2 jam dengan suhu 90°C akan mempercepat proses pemutusan ikatan rantai lignin dan hemiselulosa pada serat kulit buah pinang (Lismeri *et al.*, 2019).

Penggunaan NaOH pada proses delignifikasi dapat merusak struktur lignoselulosa sehingga lignin dapat larut dan terpisah dari serat kulit pinang (Heradewi, 2017). Temperatur 50°C dipilih karena hemiselulosa dan lignin dapat larut lebih banyak sehingga menyebabkan kadar selulosa meningkat. Waktu delignifikasi yaitu 1 jam, dipilih karena diharapkan dalam waktu tersebut akan mengakibatkan pemutusan lebih banyak rantai dari senyawa berantai panjang, yaitu hemiselulosa dan lignin. Namun jika proses delignifikasi yang dilakukan lebih lama, dikhawatirkan akan mengurangi jumlah selulosa yang didapatkan karena selulosa yang diperoleh malah mengalami degradasi (Lismeri *et al.*, 2019; Wang *et al.*, 2018). Senyawa Na₂SO₃ berperan untuk mendegradasi lignin dan menghasilkan pulp berwarna kuning kehitaman. Tahap selanjutnya, *bleaching* dengan larutan NaOCl 1,75 %. NaOCl merupakan salah satu reagen yang umum digunakan sebagai pemutih. *Bleaching* dalam penelitian ini dimaksudkan untuk melarutkan sisa senyawa lignin melalui pemotongan rantai lignin yang panjang, sehingga ketika residu dibilas dengan akuades, lignin akan larut, seperti yang dinyatakan oleh (Hu *et al.*, 2021).

Tahap selanjutnya ditambahkan larutan NaOH 17,5% untuk mengikat lignin yang ada pada serat kulit buah pinang karena NaOH berfungsi untuk memisahkan lignin dari selulosa. Pemutihan menggunakan larutan H₂O₂ 10 % sebagai senyawa oksidator kuat. Senyawa H₂O₂ akan mudah terurai menjadi anion peroksida dan air, jika dilarutkan dengan basa. Sebagai nukleofilik, anion peroksida (HOO⁻) memiliki peran dalam proses penghilangan gugus kromofor lignin, dengan cara menyerang gugus karbonil dan etilena, sehingga terbentuk spesi yang tidak berkromofor (Jufrinaldi, 2018).

Hidrolisis selulosa umumnya dilakukan dengan asam-asam kuat, karena jenis asam ini dapat dapat menyerang bagian amorf dari rantai selulosa sehingga kristalinitas selulosa meningkat. Pembuatan mikrokristal selulosa

menggunakan asam klorida (HCl) karena mempunyai kereaktifan yang lebih baik selama proses hidrolisis jika dibandingkan dengan asam lain. Rendemen selulosa yang diperoleh sebesar 5,64%. Selulosa hasil hidrolisis berupa serbuk berwarna putih seperti Gambar 1.



Gambar 1. Selulosa hasil hidrolisis

Kadar Lignin, Hemiselulosa dan Selulosa

Hasil pengujian kadar hemiselulosa, selulosa dan lignin yang diperoleh pada penelitian ini ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Kadar lignin, hemiselulosa dan selulosa dari serat kulit buah pinang

| | Lignin (%) | Hemiselulosa (%) | Selulosa (%) |
|---|------------|------------------|--------------|
| Serat kulit buah pinang awal | 1,8 | 20,15 | 38,9 |
| Selulosa serat kulit buah pinang hasil hidrolisis | 0,05 | 4,5 | 82,4 |

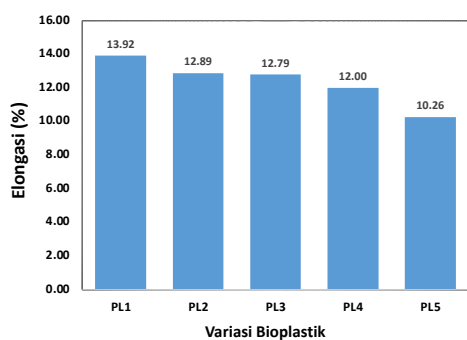
Dari Tabel 2 terlihat bahwa delignifikasi berhasil menurunkan kadar hemiselulosa $\pm 15\%$, dan lignin $\pm 1,75\%$ dari serat kulit pinang awal sedangkan kadar selulosa meningkat sejumlah $\pm 43\%$. (Huntley *et al.*, 2015) menjelaskan bahwa pemutusan ikatan hidrogen akan semakin mudah jika kekuatan asam meningkat karena mampu masuk ke dalam bagian amorf dan kristalin selulosa.

Sifat Mekanik dari Bioplastik

Sifat mekanik dari bioplastik yang dianalisis dalam penelitian ini adalah elongasi dan kekuatan tarik. Pengujian elongasi dilakukan untuk mengetahui tingkat elastisitas *film*, dimana nilai elongasi berbanding lurus dengan elastisitas. Menurut (Setiani *et al.*, 2013), nilai elongasi yang baik adalah jika melebihi 50%.

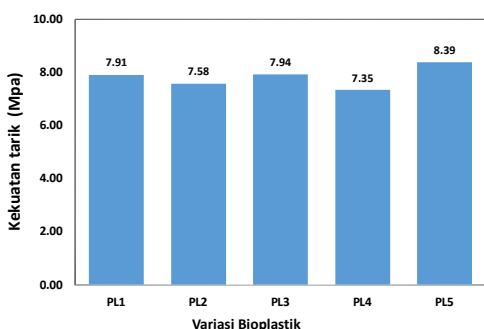
Nilai elongasi dari kelima variasi *film* bioplastik ditunjukkan pada Gambar 2. Terlihat bahwa nilai elongasi terkecil dimiliki oleh bioplastik dengan kandungan selulosa tertinggi,

yakni PL₅, dengan nilai sebesar 10,3% dan nilai elongasi yang paling tinggi adalah pada variasi bioplastik tanpa selulosa, PL₁, yang memiliki nilai sebesar ±14%. (Panjaitan *et al.*, 2017) dari penelitiannya juga menyimpulkan bahwa persen elongasi semakin berkurang jika kandungan selulosa di dalam bioplastik bertambah. Berdasarkan SNI 7188.7:2016 nilai perpanjangan bioplastik seharusnya ada pada rentang 21 - 220% (Simarmata *et al.*, 2020). Nilai perpanjangan saat putus pada seluruh variasi massa selulosa pada penelitian ini belum memenuhi standar plastik SNI 7188.7:2016 karena pada penelitian ini nilai elongasi dari bioplastik yang diperoleh adalah 10,2 - 14 %.



Gambar 2. Nilai persen elongasi (%) film bioplastik

Pengujian kuat tarik bioplastik dilakukan untuk menentukan besarnya gaya yang diberikan untuk mendapatkan tarikan yang maksimum per satuan luas area bioplastik saat memanjang. Hasil data yang menunjukkan pengaruh kekuatan tarik dari bioplastik dengan penambahan selulosa ditunjukkan pada diagram pada Gambar 3.



Gambar 3. Nilai kekuatan tarik dari film bioplastik

Gambar 3 memperlihatkan bahwa kekuatan tarikan terendah dimiliki bioplastik PL₄ yaitu 7,3 MPa. Hasil dari penelitian ini berbeda dengan penelitian Sulisty dan Ismiyati (2012)

yang menyatakan bahwa bioplastik yang diberikan *filler* selulosa akan meningkatkan nilai kuat tariknya. Pada penelitian ini terlihat bahwa penambahan selulosa tidak terlalu mempengaruhi kekuatan tarik dari film bioplastik. Hal tersebut kemungkinan disebabkan penyebaran selulosa dalam film tidak merata. Berdasarkan SNI 7188.7:2016, nilai kuat tarik plastik berkisar 24,7 - 302 MPa.

Hasil Uji Water Uptake

Pengujian *water uptake* dilakukan dengan menambahkan persentase berat polimer menggunakan air sehingga dapat diketahui ikatan dalam plastik.

Tabel 3. Pengaruh massa selulosa terhadap hidrofobitas

| Variasi | Hidrofobitas (%) |
|-----------------|------------------|
| PL ₁ | 66,4 |
| PL ₂ | 85 |
| PL ₃ | 79 |
| PL ₄ | 78 |
| PL ₅ | 58 |

Bioplastik yang dibuat pada penelitian ini diharapkan memiliki daya serap air yang sangat rendah. Komponen penyusun bioplastik (pati dan *plasticizer*) akan menentukan sifatnya dalam menyerap air. Daya serap air yang tinggi akan mempercepat kerusakan bioplastik sehingga kualitasnya menurun dan kemampuannya dalam melindungi produk akan berkurang.

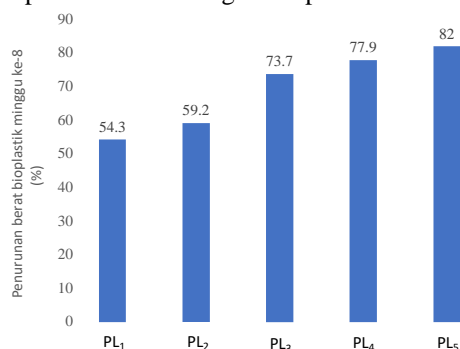
Berdasarkan Tabel 3, diketahui bahwa dalam hal ketahanan dari bioplastik terhadap air, adalah PL₂ > PL₃ > PL₄ > PL₁ > PL₅. Hasil uji *water uptake* dapat disimpulkan jika bioplastik yang tahan terhadap air adalah variasi (PL₂) dimana pada PL₂ memiliki massa selulosa yang lebih sedikit dibandingkan dengan variasi yang lain, namun dengan penambahan massa selulosa yang cukup banyak akan membuat bioplastik tidak tahan terhadap air yaitu pada variasi bioplastik (PL₅). Hal ini terjadi karena gugus hidroksil pada selulosa akan membentuk ikatan hidrogen intramolekul dengan air (Panjaitan *et al.* 2017). Berdasarkan SNI, tingkat hidrofobitas plastik konvensional mencapai 99% (Anggraini *et al.*, 2013), sehingga jika dibandingkan maka bioplastik dengan ketahanan air tertinggi ada pada PL₂ (84%). Hal ini menunjukkan bahwa ketahanan terhadap air bioplastik tersebut memiliki nilai yang berdekatan dengan SNI.

Hasil Uji Biodegradabilitas

Analisis biodegradabilitas dilakukan untuk menentukan persentase degradasi *film*

bioplastik. Pengujian biodegradasi *film* bioplastik dilakukan menggunakan metode *soil-burial test*. Metode ini dilakukan dengan cara mengubur sampel bioplastik ke dalam tanah sehingga dapat diketahui kemampuan degradasi dari tiap-tiap sampel. Bioplastik dikubur di dalam tanah selama 8 minggu dengan kedalaman 10 cm dan diamati secara berkala setiap seminggu sekali. Hasil pengamatan massa film bioplastik yang sesudah mengalami degradasi setelah delapan minggu dapat dilihat pada Gambar 4.

Disimpulkan pada minggu ke-8, yang memiliki nilai degradasi tertinggi adalah film bioplastik dengan kandungan selulosa tertinggi (PL₅) yaitu 82%. Pengamatan dalam hal bentuk dan fisik dari bioplastik menunjukkan perubahan seperti retak, kasar, kekuningan dan adanya tanah yang masuk ke dalam plastik yang diujikan. Semakin tinggi massa selulosa, maka bentuk atau fisik plastik tersebut akan semakin berubah, semakin tinggi kandungan selulosa berbanding lurus dengan lamanya waktu yang diperlukan dalam degradasi plastik.



Gambar 4. Persentase penurunan berat bioplastik pada minggu ke-8 (%)

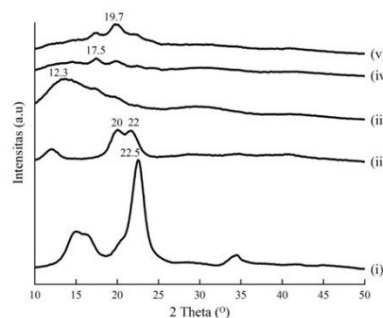
Analisis Menggunakan X-Ray Diffraction (XRD)

Analisis menggunakan XRD dilakukan terhadap lima material, untuk membandingkan indeks kristalinitas dari selulosa dari serat buah pinang, maupun bioplastik yang mengandung selulosa dalam rasio tertentu. Kelima sampel tersebut yaitu : (i) selulosa komersial, (ii) selulosa dari serta kulit buah pinang, dan tiga variasi bioplastik: (iii) PL₁, bioplastik tanpa penambahan selulosa, (iv) PL₂ bioplastik dengan penambahan selulosa konsentrasi terendah dan (v) PL₅, yaitu bioplastik dengan penambahan selulosa konsentrasi tertinggi.

Berdasarkan difraktogram dari selulosa komersial, Gambar 5(i), terlihat adanya puncak

yang muncul dengan intensitas tinggi dan memiliki puncak tajam dengan sudut $2\theta=22,5^\circ$. Gambar 5(ii), yaitu difraktogram XRD selulosa serat kulit buah pinang menunjukkan adanya dua puncak yang muncul dengan intensitas tinggi yang tidak terlalu tajam pada sudut 2θ 20-22°. Difraktogram pada Gambar 5(iii), yakni bioplastik variasi PL₁, menunjukkan puncak yang muncul dengan intensitas tinggi dan tajam dengan sudut $2\theta=12,3^\circ$. Pada (iv) hasil difraktogram XRD bioplastik variasi PL₂ menunjukkan adanya puncak yang muncul dengan intensitas tinggi dan memiliki puncak tajam dengan sudut 2θ 17,5°. Pada Gambar 5(v), bioplastik variasi PL₅ menunjukkan adanya puncak yang muncul dengan intensitas tinggi dan memiliki puncak tajam dengan sudut $2\theta=19,7^\circ$.

Gambar 5 (iii), (iv) dan (v) puncak yang muncul terlihat adalah puncak yang berbentuk lebar. Hal tersebut berhubungan dengan keberadaan PVA, asam sitrat, pati, gliserol dan selulosa di dalam bioplastik. Menurut Ciolacu *et al.* (2011) puncak difraktogram pada mikroselulosa yaitu $22,7^\circ$. Kharismi *et al.* (2018) menyatakan bahwa puncak difraksi yang tajam menunjukkan sifat kristalin standar nilai dari 2θ yaitu $22,5^\circ$ dan puncak lebar yang menunjukkan sifat amorf standar nilai dari 2θ yaitu $15,6^\circ$.



Gambar 5. Difraktogram dari : (i) selulosa komersial; (ii) selulosa serat kulit buah pinang; (iii) PL₁ ; (iv) PL₂ ; (v) PL₅

Untuk melihat perubahan kristalinitas dari material, selulosa maupun dalam bentuk bioplastik, maka analisis XRD dilakukan juga terhadap mikroselulosa komersial. Selain itu, analisis juga dilakukan terhadap tiga variasi bioplastik, yaitu bioplastik tanpa penambahan mikroselulosa (PL₁) dibandingkan dengan bioplastik dengan jumlah mikroselulosa terendah, (PL₁) dan bioplastik dengan jumlah

mikroselulosa tertinggi (PL₅) seperti yang terlihat pada Gambar 5(i) – 5(v). Hasil analisis kristalinitas ditunjukkan oleh Tabel 4.

Tabel 4. Indeks kristalinitas dari selulosa dan bioplastik yang dihasilkan

| Jenis material (kode) | Indeks kristalinitas |
|---------------------------------------|----------------------|
| Selulosa komersial (i) | 53 |
| Selulosa serat kulit buah pinang (ii) | 44,0 |
| PL ₁ (iii) | 21 |
| PL ₂ (iv) | 24 |
| PL ₅ (v) | 27 |

Kristalinitas dari material (ii), yaitu selulosa yang merupakan hasil isolasi dari kulit buah pinang lebih rendah dibanding dengan selulosa komersial (Gambar 5(i)). Diantara ketiga bioplastik yang diperoleh, terlihat bahwa bioplastik dengan selulosa tertinggi, yakni 12% (PL₅) memiliki kristalinitas yang lebih tinggi dibanding dua bioplastik lainnya, yaitu bioplastik tanpa penambahan selulosa (PL₁) dan bioplastik dengan kadar 3% (PL₂).

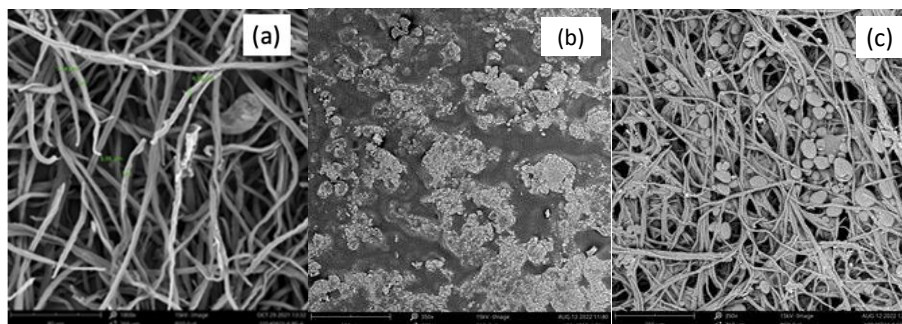
Analisis FTIR Mikroselulosa dan Bioplastik

Gambar 6 merupakan gabungan dari spektra FTIR dengan baseline. Berdasarkan Gambar 6 pada spektrum terdapat beberapa puncak yang merupakan indikasi dari gugus fungsi O-H, C-H dan C-O, yang pada Gambar 6(a) ditunjukkan oleh puncak pada terlihat di bilangan gelombang 3352 cm⁻¹, 2899 cm⁻¹ dan 1028 cm⁻¹ secara berurutan.

Pada Gambar 6(a) dan (b), munculnya gugus O-H berasal dari selulosa dimana selulosa memiliki gugus hidroksi (OH), sedangkan pada gambar (c) munculnya gugus O-H diperkirakan juga karena adanya beberapa kemungkinan sumber yang memiliki gugus (OH), seperti

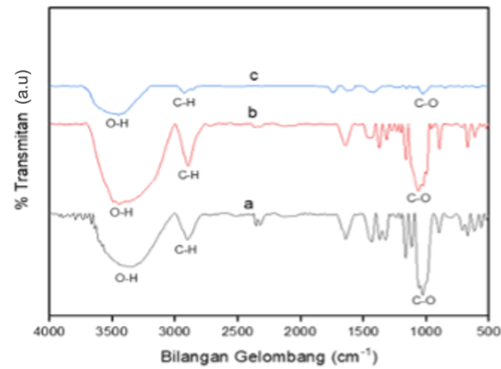
Morfologi

Morfologi dari tigas jenis sampel dimuat pada Gambar 7.



Gambar 7. Morfologi (a) serat kulit buah pinang (b) bioplastik variasi PL₁ bioplastik variasi tanpa selulosa (c) bioplastik dengan selulosa tertinggi, PL₅

PVA, asam sitrat memiliki gugus hidroksi, pati, gliserol dan selulosa, sehingga membuat intensitas yang tinggi untuk gugus O-H dan membuat puncaknya terlihat.



Gambar 6. Spektrum FTIR dari: (a) selulosa murni komersial, (b) selulosa serat kulit pinang, (c) bioplastik

Serapan gugus fungsi O-H pada penelitian ini muncul di bilangan gelombang 3352 cm⁻¹ untuk selulosa komersial, 3446 cm⁻¹ untuk selulosa serat kulit buah pinang dan pada bilangan gelombang 3448 cm⁻¹ untuk bioplastik. Ketiga bilangan gelombang tersebut mirip dengan hasil penelitian dari Wiradipta (2017) dan Anugraini *et al* (2018), dimana pita uluran O-H muncul pada bilangan gelombang 3446 dan 3331 cm⁻¹.

Gugus C-O, C-H dan C=O memiliki intensitas yang rendah sehingga membuat puncaknya tidak terlalu nampak. Pada Gambar 6(b) terdapat pita dari gugus fungsi O-H, C-H dan C-O yang terdapat pada bilangan gelombang 3446, 2897 dan 1026 cm⁻¹ dan pada Gambar (c) terdapat serapan gugus fungsi O-H, C-H, C-O yang terlihat di bilangan gelombang 3448, 2856 dan 1024 cm⁻¹.

Gambar 7(a), menunjukkan bahwa hasil SEM yang diperoleh berbentuk benang-benang fibril yang kurang seragam dengan diameter $\pm 4 - 8 \mu\text{m}$. Nasution *et al.* (2017) menyatakan bentuk selulosa yang tidak seragam dikarenakan hemiselulosa yang tidak larut dengan baik dalam poses perlakuan. Rival *et al.* (2018) menyatakan selulosa dari jerami padi diameter sebesar $5-10 \mu\text{m}$. Pada Gambar 7(b) terlihat bahwa permukaan bioplastik membentuk aglomerat yang kemungkinan adalah PVA.

Pada Gambar 7(c) terlihat bahwa permukaan bioplastik tidak rata, selain bagian dari bioplastik yang menggumpal serta ada benang-benang fibril dari selulosa serat kulit buah pinang. Kondisi tidak meratanya permukaan ini kemungkinan adalah karena ketidakhomogenan antara pati sebagai matriks dengan selulosa sebagai *filler*. Hal tersebut juga akan menyebabkan ikatan dari permukaan fiber dengan matriks menjadi lemah dan dapat mengurangi kekuatan mekanik dari bioplastik.

KESIMPULAN

Bioplastik yang memiliki karakteristik terbaik adalah bioplastik dengan penambahan selulosa 12% (PL₅); dengan nilai kekuatan tarikan sebesar 8 MPa dan elongasi sebesar 10,2 %, water uptake 58%. Variasi PL₅ juga memiliki sifat biodegradabilitas yang tinggi, yakni sebesar 82% setelah delapan minggu, dan nilai ini mendekati SNI 7188.7:2016 yaitu 100% dalam waktu 60 hari.

DAFTAR PUSTAKA

- Alashwal BY, Saad Bala M, Gupta A, Sharma S & Mishra P. 2020. Improved Properties of Keratin-Based Bioplastic Film Blended With Microcrystalline Cellulose: A Comparative Analysis. *Journal of King Saud University - Science*. **32**(1): 853-857.
- Atmaka W & Lestariana S. 2017. Studi Karakteristik Pati Singkong Utuh Berbasis Edible Film Dengan Modifikasi Cross-Linking Asam Sitrat. *Jurnal Teknologi Pertanian*. **18**(2): 143-152.
- Dynanty SDP & Mahyudin A. 2018. Pengaruh Panjang Serat Pinang Terhadap Sifat Mekanik dan Uji Biodegradasi Material Komposit Matriks Epoksi dengan Penambahan Pati Talas. *Jurnal Fisika Unand*. **7**(3): 233-239.
- Flury M & Narayan R. 2021. Biodegradable Plastic as An Integral Part of The Solution to Plastic Waste Pollution of The Environment. *Current Opinion in Green and Sustainable Chemistry*. **30**(100490): 1-7.
- Hahladakis JN, Velis CA, Weber R, Iacovidou E & Purnell P. 2018. An Overview of Chemical Additives Present in Plastics: Migration, Release, Fate And Environmental Impact During Their Use, Disposal and Recycling. *Journal of Hazardous Materials*. **344**: 177-199.
- Haque ANMA & Naebe M. 2021. Flexible Water-Resistant Semi-Transparent Cotton Gin Trash/Poly (Vinyl Alcohol) Bio-Plastic for Packaging Application: Effect of Plasticisers on Physicochemical Properties. *Journal of Cleaner Production*. **303**: 126983.
- Hu C, Battampara P, Guna V & Reddy N. 2021. Effect of Alkali Treatment on the Structure and Properties of Natural Cellulose Fibers from Areca Cathechu Shells. *Journal of Natural Fibers*. **19**(14): 9754-9764.
- Huntley CJ, Crews KD, Abdalla MA, Russell AE & Curry ML. 2015. Influence of Strong Acid Hydrolysis Processing on The Thermal Stability and Crystallinity of Cellulose Isolated From Wheat Straw. *International Journal of Chemical Engineering*. **2015**: 658163.
- Jufrinaldi. 2018. Isolasi Selulosa Dari Bagas Tebu Melalui Pemanasan Iradiasi Gelombang Mikro. *Jurnal Ilmiah Teknik Kimia*. **2**(2): 36-46.
- Kencanawati CPK, Sugita IKG, Suardana N & Suyasa IWB. 2018. Pengaruh Perlakuan Alkali terhadap Sifat Fisik, dan Mekanik Serat Kulit Buah Pinang. *Jurnal Energi Dan Manufaktur*. **11**(1): 6-10.
- Khairunnisah. 2019. Karakterisasi Bionanokomposit Pati Sukun/PVA yang Diinkorporasi dengan Nanoserat Selulosa dan Aloe Vera [Tesis]. Universitas Sumatera Utara .
- Lismeri L, Darni Y, Sanjaya MD & Immadudin MI. 2019. Pengaruh Suhu Dan Waktu Pretreatment Alkali Pada Isolasi Selulosa Limbah Batang Pisang. *Journal of Chemical Process Engineering*. **4**(1): 18-22.
- Nugroho FG, Nizado NM & Saepudin E. 2020. Synthesis of Citric Acid Crosslinked PVA/Tapioca Starch Bioplastic Reinforced With Grafted Cellulose. *AIP Conference Proceedings*. **2242**: 040040.
- Panjaitan R, Marthin, Irdoni & Bahrudin. 2017. Pengaruh Kadar dan Ukuran Selulosa Berbasis Batang Pisang Terhadap Sifat dan

- Morfologi Bioplastik Berbahan Pati Umbi Talas. *Universitas Riau*. **4**(1): 1-7.
- Pratiwi P, Fahmi H & Saputra F. 2017. Pengaruh Orientasi Serat Terhadap Redaman Suara Komposit Berpenguat Serat Pinang. *Simetris : Jurnal Teknik Mesin, Elektro dan Ilmu Komputer*. **8**(2): 813-818.
- Rujnić-Sokele M & Pilipović A. 2017. Challenges and Opportunities of Biodegradable Plastics: A Mini Review. *Waste Management and Research*. **35**(2): 132-140.
- Setiani W, Sudiarti T & Rahmidar L. 2013. Preparasi Dan Karakterisasi Edible Film Dari Poliblend Pati Sukun-Kitosan. *Jurnal Kimia Valensi*. **3**(2): 100-109.
- Simarmata EO, Hartiati A & Harsojuwono BA. 2020. Karakteristik Komposit Bioplastik Dalam Variasi Rasio Pati Umbi Talas (*Xanthosoma sagittifolium*)-Kitosan. *Jurnal Ilmiah Teknologi Pertanian Agrotechno*. **5**(2): 75-80.
- Tamiogy WR, Kardisa A, Hisbullah H & Aprilia S. 2019. Pemanfaatan Selulosa dari Limbah Kulit Buah Pinang Sebagai Bahan Baku Pembuatan Bioplastik. *Jurnal Rekayasa Kimia & Lingkungan*. **14**(1): 63-71.
- Thakur VK, Thakur MK, Raghavan P & Kessler MR. 2014. Progress in Green Polymer Composites from Lignin for Multifunctional Applications: A Review. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*. **2**(5): 1072-1092.
- Wang Q, Xiao S, Shi SQ & Cai L. 2018. The Effect of Delignification on The Properties of Cellulosic Fiber Material. *Holzforschung*. **72**(6): 443-449.

