

## PEMBUATAN MIKROKAPSUL DARI UREA-FORMALDEHID : PENGARUH WAKTU DAN PERBANDINGAN REAKTAN PADA PEMBUATAN RESIN TERHADAP PROSES MIKROENKAPSULASI

**Widayati Purwaningsih, Rochmadi, Agus Prasetya, dan Wahyu Hasokowati**

Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik UGM  
Jl. Grafika No.2, Bulaksumur, Yogyakarta  
Telp. (0274) 902171/ Fax. (0274) 902170  
w.purwaningsih@yahoo.com

### Abstrak

Teknologi pengkapsulan bahan aktif dalam ukuran mikron atau dengan istilah mikroenkapsulasi merupakan salah satu cara yang saat ini sudah sangat banyak digunakan, contohnya di industri farmasi, makanan, kertas, tinta, *perfumery*, dan pertanian. Pembuatan mikrokapsul terdiri dari pembuatan resin urea-formaldehid, emulsifikasi minyak dalam larutan urea-formaldehid dan mikroenkapsulasi. Penelitian ini mempelajari pengaruh waktu dan perbandingan reaktan pada pembuatan resin terhadap proses mikroenkapsulasi. Resin urea-formaldehid dibuat dari reaksi urea dengan formaldehid 37% pada berbagai variasi perbandingan reaktan yaitu urea:formaldehid = 1:3,6 - 1:1,8 (mol/mol) dan waktu pembuatan resin 1-2 jam. Proses mikroenkapsulasi dilakukan dengan mencampur minyak dan larutan resin urea formaldehid pada suhu 50°C, menggunakan homogenizer. Setelah itu pH campuran dibuat menjadi asam (pH=3), dan campuran diaduk selama 3 jam. Pada akhir proses, campuran ditambah air dan es, kemudian padatan mikrokapsulnya dipisahkan dan dikeringkan. Kadar minyak dianalisis dan mikrokapsul diamati dengan mikroskop digital. Hasil penelitian menunjukkan, bahwa proses pembuatan resin selama 1-2 jam menghasilkan mikrokapsul yang baik dengan karakteristik yang hampir sama pada setiap variasi waktu. Semakin besar perbandingan reaktan, semakin banyak minyak tidak terenkapsulasi dan terbentuk mikropartikel yang semakin banyak, sedangkan hasil mikrokapsulnya semakin sedikit. Ditinjau dari efek yang lain, efisiensi resin yang dihasilkan mengalami kenaikan sedangkan kadar minyak rata-rata dalam hasil mengalami penurunan. Semakin lama waktu pembuatan resin, diameter mikrokapsul rata-rata cenderung mengalami penurunan sedangkan kadar minyak rata-rata dan efisiensi resin mengalami kenaikan. Hasil mikrokapsul yang paling baik diperoleh pada suhu 70°C, pH 8, perbandingan reaktan 1:3,6(mol/mol) dan waktu reaksi 1,5 jam. Hasil mikrokapsul dari beberapa kondisi proses yang telah dilakukan mempunyai diameter berkisar antara 30 - 110  $\mu\text{m}$ .

**Kata kunci:** emulsifikasi; mikroenkapsulasi; resin urea-formaldehid

### Pendahuluan

Sebagai respon positif atas meningkatnya kebutuhan masyarakat akan produk-produk yang berkualitas dengan inovasi tinggi, kini pengembangan teknologi *microencapsulation* telah merambah banyak bidang. Teknologi pengkapsulan bahan aktif dalam kapasitas minimum berukuran mikron ini sudah banyak digunakan pada berbagai bidang, misalnya farmasi, industri makanan, kertas, tinta, *perfumery*, dan pertanian. Contoh penggunaan teknologi pengkapsulan bahan aktif dalam industri makanan adalah mikroenkapsulasi minyak ikan. Minyak ikan sangat mudah teroksidasi karena banyaknya ikatan rangkap pada gugus rantai asam lemaknya. Hal ini berarti bahwa harus diberikan perhatian yang lebih apabila minyak ikan ditambahkan pada produk makanan karena jika tidak akan menyebabkan timbulnya bau atau rasa yang tidak enak dan senyawa-senyawa hasil oksidasi yang berpengaruh buruk bagi kesehatan. Mikroenkapsulasi terhadap minyak ikan akan menghilangkan kendala-kendala tersebut yang memungkinkan para produsen makanan memasukan minyak ikan untuk peningkatan nilai tambah produk tanpa adanya perubahan penampakan dan usia simpan produk.

Penelitian tentang mikrokapsul sudah banyak dilakukan. Pembuatan mikrokapsul dari urea-formaldehid dengan proses *in situ polymerization* oleh Brown dkk. (2003) menunjukkan bahwa morfologi permukaan luar mikrokapsul dipengaruhi oleh pH reaksi. Penelitian tentang yang sama juga dilakukan oleh Kage, dkk. (2002). Pengamatan mereka menunjukkan bahwa jumlah *core material*, waktu enkapsulasi dan temperatur reaksi memberikan pengaruh yang signifikan terhadap ketebalan dinding mikrokapsul. Salauin dan Vroman (2008) menganalisis sifat termal mikrokapsul yang dibuat dari melamin-formaldehid. Penelitian ini menunjukkan bahwa sifat termofisis mikrokapsul dipengaruhi oleh kondisi reaksi. Sun dan Zhang (2002) membandingkan kekuatan mekanik dinding mikrokapsul dengan resin yang berbeda antara lain melamin-formaldehid, urea-formaldehid dan gelatin-gum arab dengan teknik *micromanipulation*.

Tujuan dari penelitian ini adalah mempelajari pengaruh variasi waktu dan perbandingan reaktan pada pembuatan resin terhadap proses mikroenkapsulasi dengan dinding mikrokapsul dibuat dari resin urea-formaldehid. Tulisan ini hanya menyajikan sebagian hasil penelitian proses mikroenkapsulasi minyak nabati dengan resin urea-formaldehid.

Proses mikroenkapsulasi yang digunakan dalam penelitian ini adalah polimerisasi langsung di permukaan mikrokapsul (*interfacial polymerization*), atau *in situ polymerization*. Sebelum proses polimerisasi di permukaan dilakukan, minyak nabati diemulsikan terlebih dulu dalam larutan resin urea-formaldehid. Resin urea-formaldehid (UF) merupakan senyawa hasil reaksi antara gugus amina ( $-NH_2$ ) dengan gugus formaldehid ( $CH_2O$ ). Reaksinya terdiri dari dua langkah, yaitu reaksi adisi dan reaksi kondensasi. Reaksi adisi terjadi sebagai berikut.



Reaksi kondensasi merupakan kelanjutan dari reaksi adisi, yaitu:



Gugus  $-OH$  dari metilol bereaksi dengan  $-H$  dari  $-NH_2$  atau  $-NH-$  urea dan menghasilkan  $H_2O$ . Reaksi ini berlangsung terus, sehingga membentuk rantai yang panjang, bahkan beberapa posisi menjadi rantai cabang. Reaksi ini yang membentuk polimer urea-formaldehid, dengan ikatan antar urea dihubungkan oleh gugus metilen ( $-CH_2-$ ). Makin besar ukuran polimer atau panjang rantai yang terbentuk, polimer ini makin sukar larut dalam air. Adanya ikatan rantai cabang (*network*) karena reaksi *crosslink* membuat polimer yang terjadi semakin keras. Reaksi kondensasi ini dipengaruhi oleh tingkat keasaman larutan. Pada kondisi asam ( $pH < 7$ ), kecepatan reaksi sebanding dengan konsentrasi ion hidrogen, tetapi pada kondisi basa, reaksi kondensasi berjalan lambat.

Dalam penelitian ini, resin urea-formaldehid (UF) yang digunakan masih berbentuk prepolimer, yaitu resin urea-formaldehid yang masih larut dalam air. Pada proses pembuatan resin prepolimer ini dilakukan penambahan larutan NaOH sehingga akan menciptakan suasana basa dengan pH 8,0-8,3 agar resinnya hanya mengandung metilol urea (hasil reaksi adisi), dengan sedikit mengandung polimer hasil reaksi kondensasi (Schildnecht, 1956). Makin besar ukuran polimer atau panjang rantai yang terbentuk, polimer ini makin sukar larut dalam air.

Pembuatan mikrokapsul dimulai dengan pembentukan emulsi minyak di dalam larutan resin UF. Dengan menggunakan *homogenizer*, minyak akan terdispersi dalam larutan urea-formaldehid dalam bentuk gelembung atau butiran minyak. Diameter gelembung tergantung dari sifat-sifat fisis minyak dan urea-formaldehid terutama viskositas dan rapat massa. Secara prinsip, diameter emulsi (= diameter mikrokapsul) dipengaruhi oleh (Zlokarnik, 2002):

$$D_{avg} \approx K \left( \frac{\mu}{(\rho D_h \sigma)^{0,5}} \right)^x \left( \frac{\rho N D_h^2}{\mu} \right)^y \quad (3)$$

dimana  $D_{avg}$  adalah diameter rata-rata mikrokapsul. Pangkat  $x$  dan  $y$  ditentukan secara eksperimen.

Dinding mikrokapsul dibentuk dari pengendapan polimer yang terjadi karena adsorpsi resin UF oleh butir emulsi. Dalam hal ini, kecepatan pembentukan dinding dipengaruhi oleh kecepatan transfer massa resin UF ke permukaan butir emulsi dan kecepatan reaksi polimerisasi di permukaan butir emulsi.

### Bahan dan Metode Penelitian

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah urea-formaldehid dan minyak nabati. Urea yang digunakan dimurnikan dulu dengan rekristalisasi. Formaldehid yang digunakan adalah larutan 37% yang mengandung metanol sekitar 10%. Minyak nabati yang digunakan adalah minyak kelapa sawit untuk minyak goreng.

Resin UF dibuat dari urea murni sebanyak 60 gram dicampur dengan 100 mL formaldehid 37% yang telah dinetralkan, direaksikan di dalam labu leher tiga pada suhu  $70^\circ C$  dengan putaran pengaduk pelan. Larutan NaOH 0,1 N digunakan untuk menciptakan suasana basa hingga pH larutan menjadi sekitar 8. Reaksi dijalankan selama 1 jam dengan putaran pengaduk lebih cepat dan suhu tetap dipertahankan sekitar  $70^\circ C$ . Setelah selesai, larutan resin prepolimer urea-formaldehid diencerkan dengan *aquadest* sampai menjadi 250 mL, didinginkan dan disimpan pada suhu kamar.

Larutan resin urea-formaldehid dicampur dengan minyak sawit pada perbandingan tertentu, lalu diaduk dengan *homogenizer* selama 30 menit, dan suhu  $50^\circ C$ . Setelah itu, *homogenizer* diganti dengan pengaduk mekanik yang berbentuk spiral, pada kecepatan sekitar 100 rpm. Emulsi yang terbentuk ditetesi larutan asam sitrat 10%, untuk menurunkan pH larutan ( $pH=3$ ), dengan tetap menjaga suhu reaksinya. Pada saat ini terjadi reaksi polimerisasi dan *crosslinking*. Reaksi dijalankan selama 3 jam. Setelah reaksi selesai, hasil suspensi mikrokapsul didinginkan dengan es kemudian ditambahkan *aquadest* secukupnya untuk melarutkan resin yang tidak menjadi *coating*. Hasil padatan (mikrokapsul) dipisahkan dengan penyaringan, lalu dikeringkan dengan oven pada suhu rendah ( $50^\circ C$ ) diikuti dengan pendinginan dalam eksikator hampa. Hasil mikrokapsul ditimbang,

dan ditentukan kadar minyaknya. Sampel hasil mikrokapsul ditumbuk sampai halus, lalu ditambah dengan N-heksana untuk melarutkan minyaknya. Setelah itu, padatan sisa disaring dan dikeringkan pada suhu  $100^{\circ}\text{C}$ , lalu ditimbang. Selisih antara berat mikrokapsul awal dengan berat padatan sisa merupakan berat minyak di dalam mikrokapsul.

Preparat untuk mengukur diameter mikrokapsul dibuat dengan melapiskan pasta mikrokapsul ke permukaan gelas *slide* mikroskop. Dengan mikroskop optik yang dilengkapi kamera digital, preparat dilihat dan diambil gambarnya dengan perbesaran. Gambar mikrokapsul ini dilihat dengan software Image Pro Plus, dimana sekitar 100 butir mikrokapsul dapat diukur diameternya.

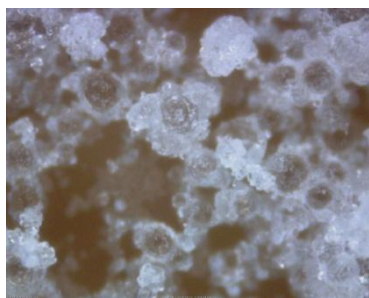
### Hasil dan Pembahasan

Pada proses *finishing*, hasil suspensi mikrokapsul didinginkan dengan es kemudian ditambahkan *aquadest* secukupnya untuk melarutkan resin yang tidak menjadi *coating*. Dengan penambahan *aquadest* ini akan terbentuk dua lapisan suspensi padatan yaitu lapisan atas (terapung di dekat permukaan) yang dinamakan hasil atas dan lapisan bawah (mengendap di dasar) yang dinamakan hasil bawah. Hasil atas merupakan mikrokapsul dengan rapat massa  $< 1\text{g/cm}^3$  sedangkan hasil bawah merupakan mikrokapsul dengan rapat massa  $> 1\text{g/cm}^3$ . Dari hasil pengamatan dengan mikroskop, hasil atas merupakan mikrokapsul berbentuk bola dengan permukaan yang relatif halus, sedangkan mikrokapsul yang mengendap sebagai hasil bawah berupa mikrokapsul berbentuk bola dan padatan mikrokapsul yang bentuknya tidak teratur. Padatan mikropartikel ini adalah polimer UF yang mengendap, umumnya menempel di permukaan mikrokapsul (Brown dkk., 2003).

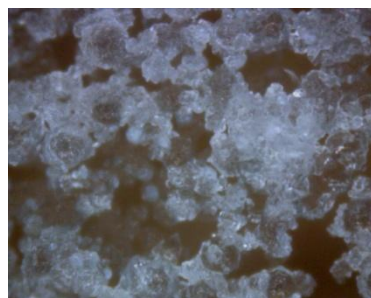
Pada eksperimen ini variabel yang divariasikan adalah waktu polimerisasi dan perbandingan reaktan pada pembuatan resin untuk mengetahui pengaruhnya terhadap proses mikroenkapsulasi.

#### ***Pengaruh waktu pembuatan resin prepolimer UF (polimerisasi) terhadap proses mikroenkapsulasi***

Pada eksperimen ini, waktu polimerisasi divariasikan antara 1 – 2 jam pada suhu  $70^{\circ}\text{C}$ , perbandingan U : F = 1 : 3,6 dan pH = 8. Hasil pengamatan secara visual menggunakan mikroskop optik yang dilengkapi kamera digital menunjukkan bahwa proses mikroenkapsulasi pada waktu pembuatan resin 1 – 2 jam menghasilkan mikrokapsul yang baik dengan karakteristik yang hampir sama pada setiap variasi waktu seperti yang terlihat dalam Gambar 1.



Hasil mikrokapsul pada  $t = 1$  jam



Hasil mikrokapsul pada  
 $t = 1,5$  jam



Hasil mikrokapsul pada  $t = 2$  jam

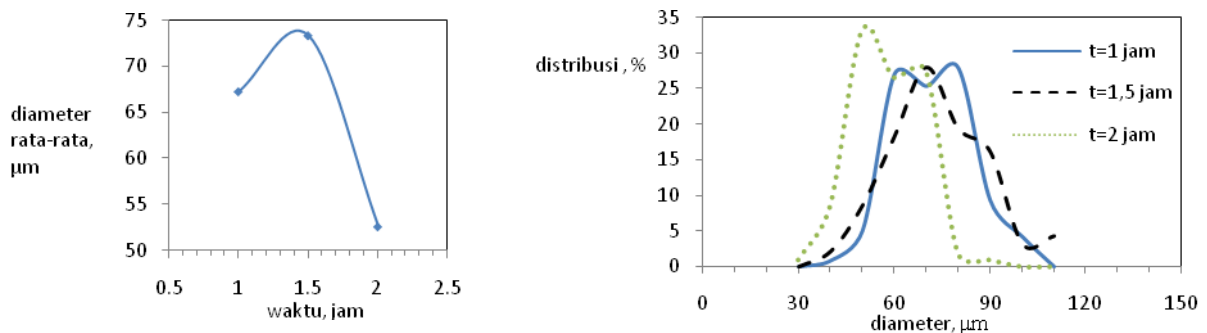
**Gambar 1. Pengaruh waktu pembuatan resin terhadap hasil mikrokapsul**

Hasil pengukuran diameter mikrokapsul dengan *software* Image Pro Plus, dimana sekitar 100 butir mikrokapsul dapat diukur diameternya disajikan dalam Tabel 1 sebagai berikut.

**Tabel 1. Diameter rata-rata mikrokapsul pada variasi waktu pembuatan resin UF**

Waktu reaksi (jam)	$D_{avg}$ ( $\mu\text{m}$ )
1	73,4
1,5	67,3
2	52,6

Semakin lama waktu pembuatan resin, diameter mikrokapsul rata-rata cenderung mengalami penurunan seperti terlihat pada Gambar 2. Hal ini dapat dijelaskan seperti pada bagian Pendahuluan di atas. Semakin lama waktu pembuatan resin, maka reaksi (1) dan (2) akan berlangsung terus sehingga rantai polimer yang terbentuk akan semakin panjang. Makin besar ukuran polimer atau panjang rantai yang terbentuk, polimer ini makin sukar larut dalam air dan adanya ikatan rantai cabang (*network*) karena reaksi *crosslink* membuat polimer yang terjadi semakin keras. Hal ini menyebabkan proses *coating* menjadi tidak sempurna.



**Gambar 2. Pengaruh waktu pembuatan resin terhadap diameter rata-rata mikrokapsul**

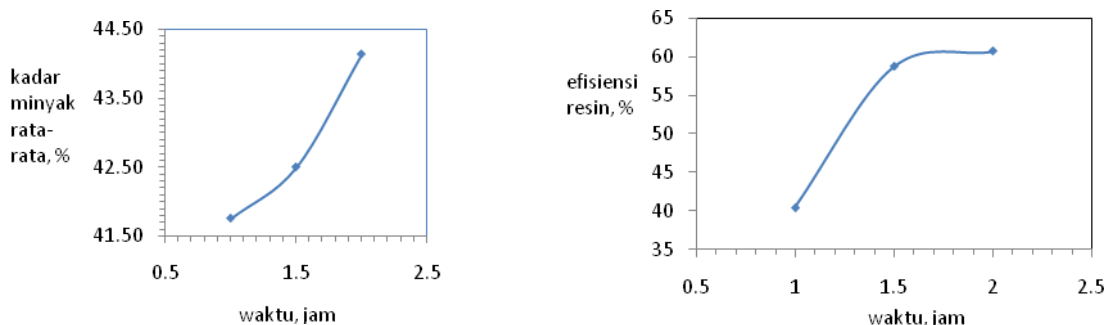
Kadar minyak rata-rata didefinisikan sebagai fraksi minyak yang menjadi mikrokapsul terhadap berat hasil mikroenkapsulasi. Formulasinya sebagai berikut.

$$\text{Kadar minyak rata-rata} = \frac{\text{berat minyak dalam mikrokapsul}}{\text{berat hasil mikroenkapsulasi}} \times 100\% \quad (4)$$

Sedangkan efisiensi resin (fraksi resin yang menjadi *coating* terhadap berat awal resin) dapat dianalisis menggunakan persamaan sebagai berikut.

$$\text{Efisiensi resin} = \frac{\text{berat dinding kapsul}}{\text{berat resin}} \times 100\% \quad (5)$$

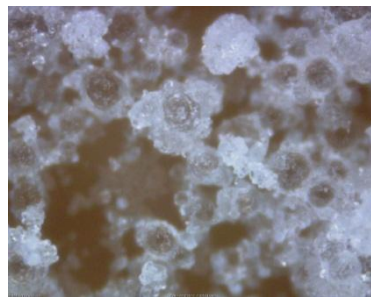
Seperti yang terlihat dalam Gambar 3, semakin lama waktu pembuatan resin maka kadar minyak rata-rata dalam hasil mikroenkapsulasi maupun efisiensi resin cenderung mengalami kenaikan. Hal ini disebabkan semakin lama waktu pembuatan resin maka resin UF yang dihasilkan semakin matang sehingga semakin banyak resin yang menjadi *coating* dan semakin banyak pula butiran minyak yang terenkapsulasi.



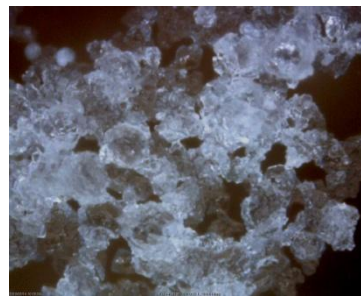
**Gambar 3. Pengaruh waktu pembuatan resin terhadap kadar minyak dan efisiensi resin pada hasil bawah**

***Pengaruh perbandingan reaktan resin prepolimer UF terhadap proses mikroenkapsulasi***

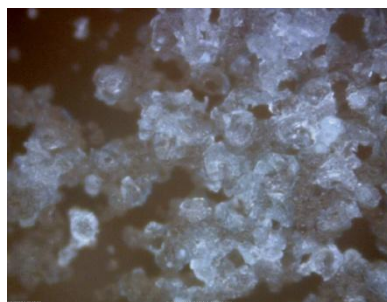
Eksperimen dilakukan pada suhu 70°C, dengan waktu polimerisasi 1 jam dan pH = 8. Perbandingan reaktan resin prepolimer UF divariasikan antara 1 : 3,6 sampai 1 : 1,8 (mol/mol). Hasil pengamatan dengan mikroskop optik menunjukkan bahwa semakin besar perbandingan reaktan maka semakin banyak minyak tidak terenkapsulasi dan terbentuk mikropartikel yang semakin banyak. Gambar 4 menunjukkan bahwa pada perbandingan reaktan UF = 1 : 2,4 sampai 1 : 1,8 (mol/mol), hasil mikrokapsul terlihat mengandung lebih banyak mikropartikel (warna putih) bila dibandingkan dengan hasil mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1 : 3,6 (mol/mol). Hasil mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1 : 2,4 sampai 1 : 1,8 (mol/mol) berupa mikrokapsul yang lengket satu dengan yang lain dan bentuk mikrokapsulnya tak beraturan sehingga diameter mikrokapsulnya tidak diamati. Selain itu terlihat pula bahwa mikrokapsul yang terbentuk semakin sedikit dengan semakin besarnya perbandingan reaktan UF. Pengukuran tegangan muka larutan resin UF menunjukkan bahwa tegangan muka naik dengan naiknya konsentrasi resin UF sehingga semakin sedikit mikrokapsul yang terbentuk.



Hasil mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1 : 3,6



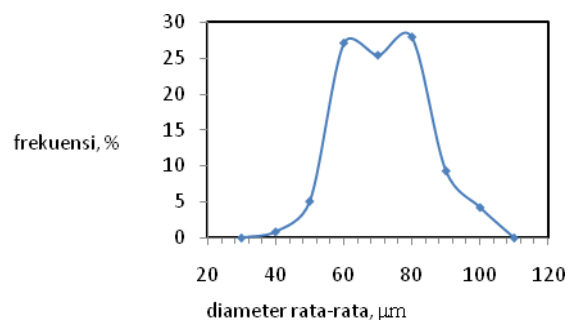
Hasil mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1:2,4



Hasil mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1 : 1,8

**Gambar 4. Pengaruh perbandingan reaktan resin prepolimer UF terhadap hasil mikrokapsul**

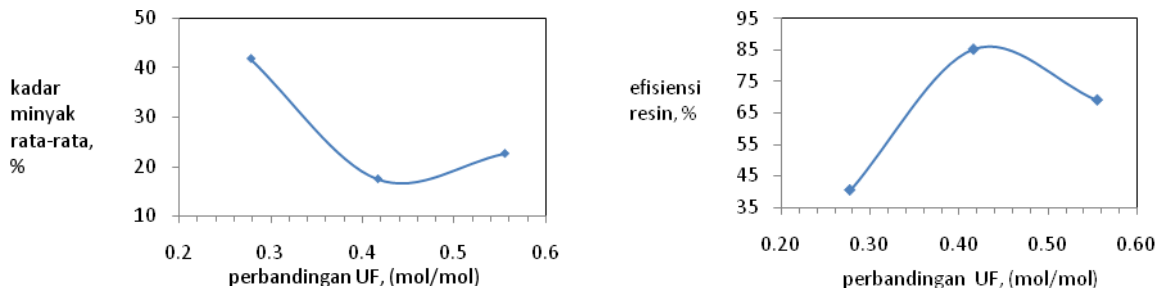
Diameter rata-rata yang diperoleh pada perbandingan reaktan UF = 1 : 3,6 (mol/mol) adalah 67,2587 µm, dengan distribusi diameter rata-rata terlihat pada Gambar 5.



**Gambar 5. Distribusi diameter rata-rata mikrokapsul pada perbandingan reaktan UF = 1 : 3,6 (mol/mol)**

Sedangkan dari Gambar 6 dapat ditarik kesimpulan bahwa semakin besar perbandingan reaktan UF maka kadar minyak rata-rata dalam hasil bawah cenderung mengalami penurunan sedangkan efisiensi resin mengalami

kenaikan. Hal ini sesuai dengan pengamatan visual pada Gambar 5 di atas yaitu pada perbandingan reaktan UF yang semakin besar, semakin sedikit mikrokapsul yang terbentuk, sebaliknya mikropartikelnya semakin banyak. Mikropartikel ini adalah resin yang tidak membentuk *coating*, sebagian menempel dalam bulatan mikrokapsul dan sebagian lagi menjadi padatan yang mengendap dalam hasil bawah.



**Gambar 6. Pengaruh perbandingan reaktan resin UF terhadap kadar minyak dan efisiensi resin pada hasil bawah**

### Kesimpulan

Mikrokapsul yang paling baik didapatkan suhu 70°C, pH 8, perbandingan reaktan 1:3,6 (mol/mol) dan waktu reaksi 1,5 jam. Semakin besar perbandingan reaktan, semakin banyak minyak tidak terenkapsulasi dan terbentuk mikropartikel yang semakin banyak atau dengan kata lain kadar minyak rata-rata dalam hasil mengalami penurunan. Semakin lama waktu pembuatan resin, diameter mikrokapsul rata-rata cenderung mengalami penurunan sedangkan kadar minyak rata-rata dan efisiensi resin mengalami kenaikan. Hasil mikrokapsul dari beberapa kondisi proses yang telah dilakukan mempunyai diameter berkisar antara 30 - 110µm.

### Ucapan Terima Kasih

Terima kasih ditujukan kepada Universitas Gadjah Mada, atas pemberian dana penelitian hibah fundamental ini, serta Jurusan Teknik Kimia UGM atas fasilitas laboratoriumnya.

### Daftar Notasi

$D_{avg}$	= diameter rata-rata mikrokapsul
$D_h$	= diameter rotor <i>homogenizer</i>
$K$	= konstante
$N$	= kecepatan putar <i>homogenizer</i>
$\mu$	= viskositas larutan resin UF
$\rho$	= rapat massa larutan resin UF
$\sigma$	= tegangan antar muka minyak-larutan resin

### Daftar Pustaka

- Brown, E.N., Kessler, M.R., Sottos, N.R., dan White, S.R., (2003), "In situ poly(urea-formaldehyde) microencapsulation of Dicyclopentadiene", *J Microencapsul*, 6, hal. 719-730.
- Kage, H., Kawahara, H., Hamada, N., dan Ogura, H., (2002), "Effects of core material, operating temperature and time on microencapsulation by *in situ* polymerization method", *Advanced Powder Technol.*, 13, hal. 377-394.
- Salaün, F., dan Vroman, I., (2008), "Influence of core materials on thermal properties of melamine-formaldehyde microcapsules", *Eur Polym J*, 44, hal. 849-860.
- Schildnecht, C.E., (1956), "Polymer Process", Vol.10, John Willey and Sons, Inc., New York, pp. 295-319.
- Sun, G., dan Zhang, Z., (2002), "Mechanical strength of microcapsules made of different wall materials", *Int J Pharm*, 242, hal.307-311.