

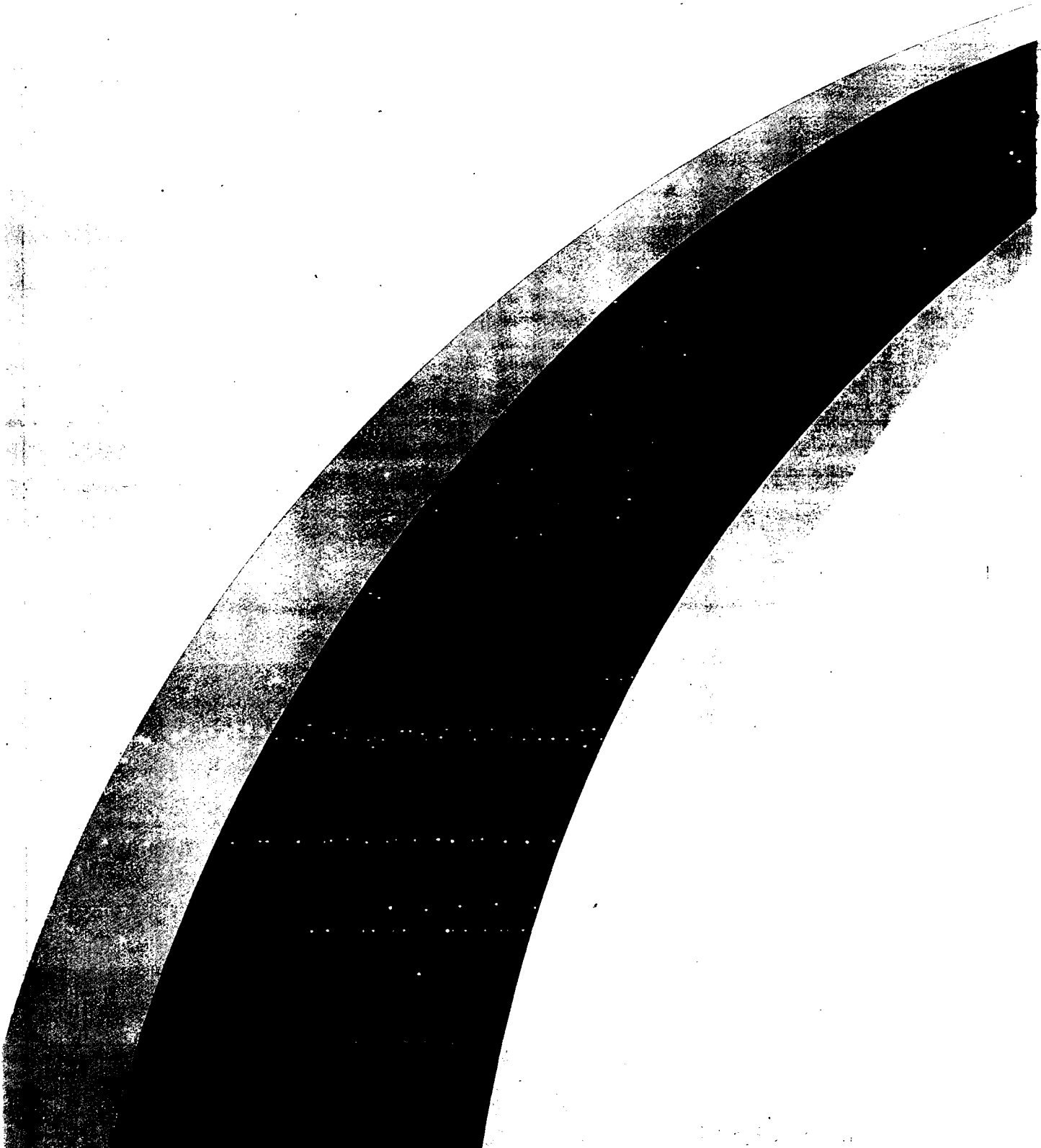
3

ISSN. 0853-4098

majalah

# *iptek*

JURNAL ILMU PENGETAHUAN ALAM dan TEKNOLOGI



Volume 15, Nomor 3, Agustus 2004 ■

# **MAJALAH IPTEK – ITS**

Akreditasi No: 23a/DIKTI/KEP/2004, tanggal 03 Juni 2004

**VOLUME 15, NOMOR 3, AGUSTUS 2004**

## **Penanggung Jawab**

Rektor ITS

## **Penasehat**

Pembantu Rektor Bidang Akademik ITS

## **Penanggung Jawab Harian**

Ketua LPPM-ITS

## **DEWAN REDAKSI**

### **Ketua**

Prof. Mahmud Zaki, M.Sc

### **Sekretaris**

Ir. Patdono Suwignjo, M.Eng.Sc., Ph.D.

### **Anggota**

Prof. Dr. Ir. M. Rachimoella, Dipl. EST

Prof. Ir. Rachmat Punvono, M.Sc.

Ir. Paulus Indiyono, M.Sc., Ph.D.

Prof. Susanti Linuwih, M.Stat., Ph.D.

Prof. Dr. Suasmoro

Dr. Perry Burhan, M.Sc.

Prof. Ir. I N Sutantra, M.Sc., Ph.D.

Prof. Ir. Arif Djunaidy, M.Sc., Ph.D.

Prof. Dr. Ir. Mauridhie Hery P., M.Eng.

Dr. Ir. Udi Subakti, M.Sc.

Prof. Ir. Happy Ratna S., M.Sc., Ph.D.

Dra. Lubna Algadrie, M.A.

### **Editor Eksekutif**

Drs. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D.

### **Sekretariat**

Lembaga Penelitian dan Pengabdian kepada Masyarakat (LPPM)

Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS), Surabaya

### **Alamat Redaksi**

LPPM-ITS

Kampus ITS Sukolilo Surabaya (60111)

Telp. (031) 5944792

Fax. (031) 5996670

**email:** kalppm@rad.net.id

### **Diterbitkan oleh**

Lembaga Penelitian dan Pengabdian kepada Masyarakat (LPPM), ITS, Surabaya

# SINTESIS DAN KARAKTERISASI RESIN LIGNIN RESORSINOL FORMALDEHIDA SEBAGAI PEREKAT KAYU LAMINA

Adi Santoso<sup>§</sup>, Surdiding Ruhendi\*, Yusuf Sudo Hadi<sup>†</sup> dan Suminar S Achmadi<sup>‡</sup>

## ABSTRAK

Lignin yang terdapat dalam likuor hitam sulfat (dikenal dengan lignin kraft) mempunyai afinitas yang kuat apabila direaksikan dengan formaldehid untuk membentuk perekat lignin formaldehid. Untuk meningkatkan kualitas kekuatan mengikat seperti daya rekat, lignin di-kopolimerisasi dengan resorsinol membentuk resin lignin formaldehid resorsinol (LRF). Resin tersebut dapat dipergunakan dalam industri kayu lapis seperti sebagai perekat kayu lapis (CVL), perekat sambungan kayu, dan glulam. Untuk meminimalkan ketergantungan pada perekat impor, telah dilakukan penelitian tentang sintesis dan karakterisasi LRF sebagai lignin kayu yang berasal dari likuor hitam sulfat. Karakterisasi resin LRF dilakukan menggunakan metoda FTIR, DTA, XRD, sifat fisik dan sifat mekanik. Hasilnya memperlihatkan bahwa komposisi optimum resin adalah L:R:F = 1:0.5:2, dengan prosentase pengerasan 1.5 % kandungan padatan. Resin LRF mempunyai karakter spesifik dan daya rekat yang mengikuti standar JAS 1996.

**Kata kunci:** lignin resorsinol formaldehida, sintesis, perekat kayu

## ABSTRACT

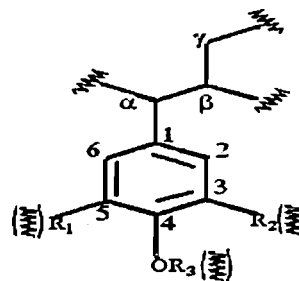
The lignin in the sulphate's black liquor (known as kraft lignin) has a strong affinity when being reacted with formaldehyde to form lignin formaldehyde adhesives. To increase the quality of the bonding strength of such adhesives, the lignin is further co-polymerized with resorcinol to lignin resorcinol formaldehyde (LRF) resins. The resin can be employed in the manufacture of reconstituted wood products such as laminated veneer lumber (LVL), finger-jointed wood assembly and glue laminated lumber (glulam). In order to minimize national dependence on imported adhesives, a research about synthesis and characterization of LRF as wood-lignin based adhesive from sulphate's black liquor has been done. The characterization of LRF resin was performed using FTIR, DTA, XRD. The physical and mechanical properties of the resin were also evaluated. The results showed that the optimum composition of the resin was at L/R/F mol ratio = 1:0.5:2, with percentage of hardener 1.5% of solid content. The LRF resin had specific characters, and the laminated wood bonding strength met the JAS-1 996 standard.

**Keywords:** lignin resorcinol formaldehyde, synthesis, wood adhesive

## 1. PENDAHULUAN

Lignin sebagai limbah yang dihasilkan dari pembuatan pulp, telah digunakan sebagai bahan perekat sejak dikenal pemasakan kayu dengan proses sulfit. Pemanfaatan lignin dari lindi hitam dikaitkan dengan upaya mengurangi kebergantungan pada perekat sintesis sebagai hasil olahan asal minyak bumi yang merupakan sumber daya tidak terbarukan, mengurangi pencemaran lingkungan, dan usaha untuk menekan biaya perekat.

Berdasarkan strukturnya (Gambar 1), lignin yang merupakan polifenol, menghasilkan perekat mirip dengan resin fenol formaldehida (PF).



Gambar 1. Unit fenil propanoid lignin:  $R_1, R_2 = H, OCH_3$ ,  $R_3 = H, CH_3, CH_2$ , atau/dan ikatan yang mungkin pada unit-unit fenil propanoid lain.

<sup>§</sup> Puslitbang Teknologi Hasil Hutan, PO Box 182, Bogor 16001; e-mail: [Adisant04\(ii\)Nahoo.com](mailto:Adisant04(ii)Nahoo.com)

<sup>#</sup> Jurusan Teknologi Hasil Hutan, Fakultas Kehutanan IPB, Kampus Darmaga, Bogor 16680

<sup>†</sup> Jurusan Kimia, Fakultas MIPA IPB, Kampus Darmaga, Bogor 16680

Hal ini terutama secara nyata berlaku bagi lignin alam dalam kayu, sementara lignin teknis (lignosulfonat dan lindi hitam) harus diberi ikatan silang guna mengubahnya ke dalam bentuk resin yang tidak larut. Untuk aplikasinya, lignin teknis memerlukan suhu kempa yang tinggi dengan waktu pemanasan lebih lama atau dengan menggunakan konsentrasi asam yang lebih pekat (Pizzi, 1994).

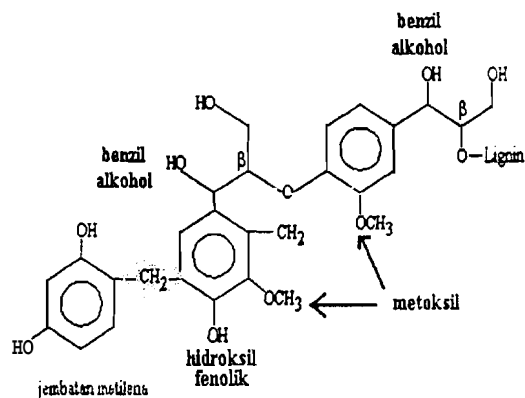
Sulitnya upaya pembuatan lignin sebagai bahan perekat ternoset, telah mendorong pemakaian lignin ini sebatas hanya sebagai campuran bahan perekat, dengan maksud untuk menghemat pemakaian perekat utama (Sellers, 2001), seperi tercermin dari beberapa hasil penelitian, yang antara lain telah dilakukan oleh Falkehag (1975), Pizzi (1983), Syafii (1999), Iskandar dan Santoso (2001).

Meski demikian, tidak tertutup kemungkinan bahwa lignin dapat dikopolimerisasi dengan fenol atau resorsinol, dan formaldehida sehingga membentuk resin lignin fenol formaldehida (LPF) (Santoso *et al.*, 2001a), atau lignin resorsinol formaldehida (LRF) (Pizzi, 1994; Ruhendi, 1999; Santoso *et al.*, 20016).

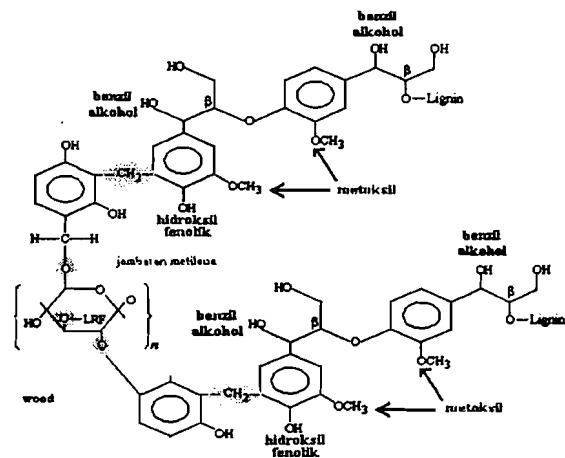
Perekat kempa dingin LRF untuk aplikasi *finger joint* dan *glulam* atau kayu lamina, mengandung resorsinol sekitar 13,6-19% (dari resin cair total) (Klashorst *et al.*, 1985 dan Truter *et al.*, 1994 dalam Pizzi 1994). Perekat kempa dingin ini dibuat dengan mencangkok resorsinol ke dalam lignin teknis melalui metilolasi lignin, yang selanjutnya membentuk jembatan metilena antara resorsinol dan polimer lignin yang dirnetilolasi, menghasilkan produk berupa perekat yang mampu berikatan silang pada suhu lingkungan dengan memanfaatkan paraformaldehida, dan membentuk seri jembatan metilena pada setiap sambungan dua terminal resorsinol yang masing-masing terancang-kok di atas polimer lignin (Gambar 2).

Dalam aplikasi sebagai perekat, resin lignin resorsinol formaldehida dapat berikatan secara spesifik dengan kayu karena resin tersebut bersifat polar, yang dicirikan antara lain oleh adanya gugus hidroksil (OH) dan karbonil (CO) (Garrat, 1964). Di lain pihak salah satu komponen kayu adalah selulosa, yang mengandung gugus hidroksil dan karbonil (Kollman dan Cote, 1968) sehingga bersifat polar. Berdasarkan keserupaan sifat tersebut, Pizzi (1983) mengemukakan bahwa

perekat bereaksi dengan selulosa membentuk ikatan yang kuat (Gambar 3).



Gambar 2. Perkiraan struktur kopolimer LRF (Pizzi, 1994).



Gambar 3. Perkiraan struktur ikatan antara kayu dengan LRF (Pizzi, 1994).

Dalam penelitian ini dilakukan sintesis dan pencirian resin lignin resorsinol formaldehida (LRF) dari lignin isolat asal lindi hitam, untuk perekat kayu lamina dengan proses kempa dingin, sebagai alternatif substitusi perekat fenol resorsinol formaldehida (PRF), yang sampai saat ini masih diirpor.

Penelitian ini bertujuan mengetahui karakter resin LRF yang diperoleh dengan cara kopolimerisasi, berkecaraan dengan pemanfaatannya untuk perekat kayu lamina.

## 2. PROSEDUR PERCOBAAN

### (a) Sintesis resin LRF

Pembuatan resin lignin resorsinol formaldehida dilakukan sebagai berikut: 500 gram lignin dicampur dengan NaOH 10% dalam gelas piala, diaduk pada suhu ruangan sampai membentuk pasta. Selanjutnya ditambahkan larutan NaOH 50% sambil diaduk sampai semua pasta terlarut, dan pH mencapai 10.

Larutan yang terbentuk kemudian dibubuhi dengan resorsinol sedikit demi sedikit dan diaduk sampai homogen. Larutan tersebut dikondisikan sampai pH mencapai 11 dengan menambahkan larutan NaOH 50%, kemudian ditambahkan larutan formaldehida 37% sambil diaduk. Kemudian larutan NaOH 10% dirnasukkan, dan campuran diaduk lagi sampai pH larutan mencapai pH 11. Reaksi dilakukan pada suhu kamar. Komposisi resin yang dibuat tercantum pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi resin LRF, dalam mol.

Lignin	Resorsinol	Formaldehida
1	0,3	2
1	0,5	2
1	0,7	2
1	0,9	2
1	1,1	2

**Catatan:** 1 mol lignin setara dengan 180 gram (Gillespie, 1985 dalam Hemingway *et al.*, 1988).

### (b). Karakterisasi resin LRF

Reaksi kondensasi antara lignin, resorsinol, dan formaldehida dan optimasinya dipelajari dengan spektroskopi inframerah, difraksi sinar-X, dan DTA.

### (c). Pengujian sifat fisis-kimia, dan keteguhan rekat resin LRF

Pengujian sifat fisis-kimia resin LRF hasil kopolimerisasi mengacu pada Standar Nasional Indonesia (SNI, 1998), terdiri atas kenampakan (uji visual) yaitu dengan cara menuangkan sedikit contoh di atas kaca objek, lalu dilaburkan hingga membentuk lapisan film yang tipis. Pengamatan dilakukan secara visual terhadap adanya butiran padat, partikel kasar, dan benda asing lainnya dengan membedakan gelembung udara yang mungkin terbentuk; kadar padatan (solid content) dengan cara menirnbang 1,5 g (A) perekat dalam

bejana yang bobotnya sudah diketahui dan dirnasukkan ke dalam oven dengan suhu  $(130 \pm 2)^{\circ}\text{C}$ , kemudian dirnasukkan ke dalam desikator, dan ditimbang kembali setelah dingin. Pengerinan dan penirnbangan dilakukan sampai diperoleh bobot tetap (K). Kadar padatan resin (P) dihitung dengan rumus:  $P = (WA) \times 100 \%$ ; viskositas dengan cara rnernasukkan sejumlah perekat ke dalam bejana viskotester, kemudian diukur viskositasnya dengan alat viskosimeter dalam satuan poise; keasaman (pH) resin diukur dengan menggunakan pH-meter. Contoh dirnasukkan ke dalam gelas piala 100 ml, kemudian diukur pH-nya sebanyak tiga kali. Nilai pH merupakan rata-rata hasil pengukuran; bobot jenis perekat dilakukan dengan cara menirnbang piknometer kosong, lalu dimasukkan ke dalamnya air suling hingga penuh dan ditutup. Setelah bagian luar dibersihkan dan dikeringkan dengan kertas tisu, selanjutnya piknometer ditimbang lagi. Air dari dalam piknometer dikeluarkan, selanjutnya diganti dengan contoh perekat, ditimbang lagi. Bobot jenis perekat dihitung dengan rumus:  $BJ = (W_3 - W_1) / (W_2 - W_1)$ , dengan: BJ = bobot jenis,  $W_1$  = bobot piknometer kosong (g),  $W_2$  = bobot piknometer berisi air (g),  $W_3$  = bobot piknometer berisi contoh (g); kadar formaldehida bebas (Roffael, 1993) ditetapkan dengan metode asetilaseton (reagen Nash) pada panjang gelombang 412 nm (Nash 1953, Belmin 1963 dalam Roffael 1993) yaitu dengan mencampurkan 10 ml larutan contoh pada 10 ml larutan arnoniurn asetat 20% (200 g dalam 1000 ml). Ke dalam campuran itu dimasukkan 10 ml larutan asetil aseton (4 ml dalam 1000 ml). Larutan tersebut kemudian dipanaskan dengan penangas air selama 10 menit pada suhu  $40^{\circ}\text{C}$ , kemudian didinginkan hingga mencapai suhu kamar, dan diukur secara spektrofotometri pada panjang gelombang 412 nm. Uji keteguhan rekat kayu lamina mengacu pada standar Jepang (JAS, 1996), menggunakan jenis kayu kempas (*Koom-passia malacensis* Maing.), paraformaldehida sebagai pengeras sebanyak 1,5% dari bobot resin padat, dan masa kempa 15 jam dengan tekanan  $10 \text{ kg/cm}^2$  pada suhu kamar. Sebagai perbandingan digunakan perekat fenol resorsinol formaldehida (impor), pengujian keteguhan rekat ini berupa keteguhan geser tekan masing-masing dilakukan dalam bentuk uji basah dan uji kering. Untuk uji basah, contoh uji yang telah disiapkan diberi

perlakuan sebagai berikut: contoh uji direndam dalam air mendidih selama 4 jam, kemudian dimasukkan ke dalam oven dengan suhu  $(60 \pm 2)^\circ\text{C}$  selama 20 jam. Contoh uji direndam kembali dalam air mendidih selama 4 jam, lalu direndam dalam air dingin hingga mencapai suhu kamar. Selanjutnya dalam keadaan basah, contoh tersebut diuji. Nilai keteguhan geser tekan dihitung dengan rumus:  $K_{\text{pr}} = \text{PIA}$ , di mana  $K_{\text{pr}}$  = Keteguhan geser tekan ( $\text{kg}/\text{cm}^2$ ), P = Beban maksimum (kg), A = Luas bidang geser ( $\text{cm}^2$ ).

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### (1) Karakterisasi resin LRF

Karakter resin lignin resorsinol formaldehida yang dipelajari dengan menggunakan spektrometer inframerah (Gambar 4, dan 5). Pada gambar tersebut terlihat adanya pergeseran pita absorpsi dari posisi awal seap reaktan. Ciri guaiasil mengalami pergeseran bilangan gelombang dari daerah  $1210 \text{ cm}^{-1}$  ke daerah  $1240 \text{ cm}^{-1}$  (Utama *et al.*, 2002). Gugus hidroksil yang muncul pada daerah bilangan gelombang  $3410 \text{ cm}^{-1}$  mengindikasikan terwakilinya gugus OH dari lignin maupun resorsinol dalam kopolimer LRF, yang pada resin PRF muncul di daerah bilangan gelombang  $3455 \text{ cm}^{-1}$ .

Sementara vibrasi cincin aromatik dan regangan C=C kopolimer LRF masing-masing muncul pada

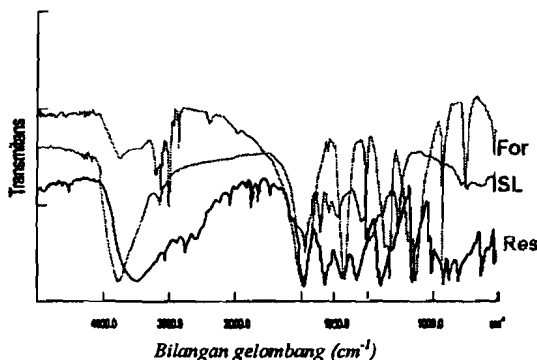
daerah sekitar  $1570 \text{ cm}^{-1}$  dan  $1465 \text{ cm}^{-1}$ . Pada resin PRF ciri tersebut muncul di daerah bilangan gelombang  $1605 \text{ cm}^{-1}$  dan  $1455 \text{ cm}^{-1}$ .

Vibrasi ikatan C-C pada kopolimer LRF di daerah bilangan gelombang  $970 \text{ cm}^{-1}$  mewakili ikatan yang sama yang ada dalam reaktan penyusun kopolimer, yang semula muncul masing-masing di daerah sekitar  $1003 \text{ cm}^{-1}$ ,  $934 \text{ cm}^{-1}$ , dan  $963 \text{ cm}^{-1}$ . Ciri yang sama pada resin PRF muncul di daerah bilangan gelombang  $955 \text{ cm}^{-1}$ .

Vibrasi CH luar bidang untuk benzena tersubstitusi yang pada lignin isolat muncul di daerah sidik jari ( $615 \text{ cm}^{-1}$ ), pada kopolimer LRF muncul di daerah yang sama, diiringi oleh munculnya pita absorpsi di daerah bilangan gelombang  $525 \text{ cm}^{-1}$  yang mengindikasikan adanya regangan C-H gugus metilena.

Pada resin PRF ciri tersebut muncul di daerah bilangan gelombang  $500 \text{ cm}^{-1}$ . Ciri khas lain yang penting diamati adalah pada bilangan gelombang sekitar  $1150 \text{ cm}^{-1}$  untuk regangan eter alifatik yang dihasilkan yang dihasilkan dari reaksi antara formaldehida dengan cincin aromatik (Karina dan Pujiastuti, 1996).

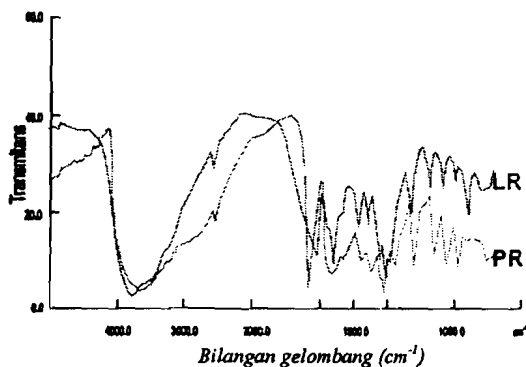
Spektrum inframerah untuk regangan eter alifatik tersebut pada kopolimer LRF muncul di daerah bilangan gelombang  $1145 \text{ cm}^{-1}$ , sementara pada PRF di daerah bilangan gelombang  $1140 \text{ cm}^{-1}$ .



**Keterangan:**

ISL = Lignin isolat; Res = resorsinol; For = formaldehida

Gambar 4. Spektrum inframerah reaktan resin LRF.



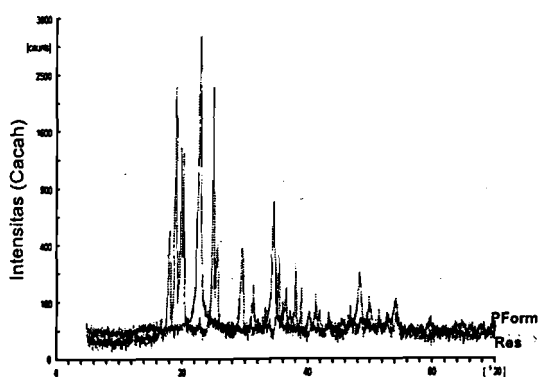
**Keterangan:**

PR = fenolresorsinol formaldehida; LR = lignin resorsinol formaldehida

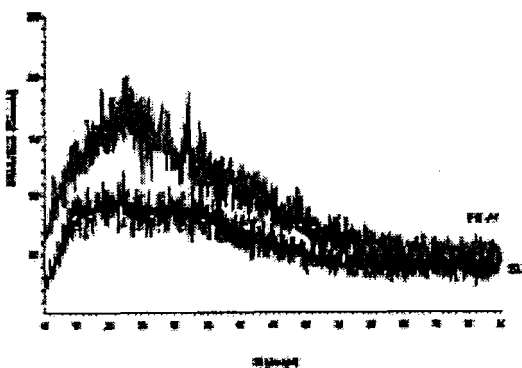
Gambar 5. Spektrum inframerah resin LRF dan PRF.

Pergeseran-pergeseran pita absorpsi yang dikehendaki di atas mengindikasikan telah terjadi reaksi kimia (Tadjang, 2001; Utarna et al., 2002), dalam hal ini antara lignin, resorsinol, dan formaldehida membentuk kopolimer LRF. Hal ini diperkuat pula dengan hilangnya pita serapan di daerah bilangan gelombang  $615\text{ cm}^{-1}$ ,  $770\text{ cm}^{-1}$ , dan  $690\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan daerah sidik jari, yang khas untuk masing-masing reaktan tersebut.

Hasil pencirian lebih lanjut dengan difraksi sinar-X menunjukkan adanya pergeseran dari posisi awal setiap reaktan. Pada Gambar 6 nampak diagram puncak resorsinol di daerah  $2\theta$  sekitar  $18,095\text{--}24,945^\circ$ , dan formaldehida di daerah  $2\theta$  sekitar  $22,860^\circ$ ; yang masing-masing mencirikan bentuk kristalin dari kedua reaktan tersebut.

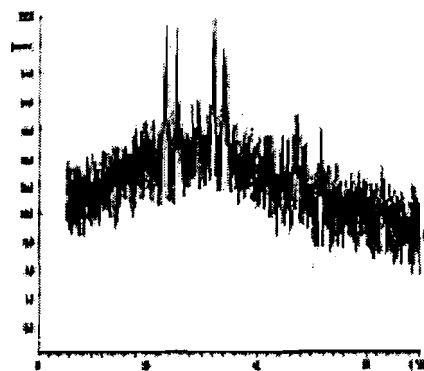


**Keterangan** Pform = paraformaldehida; Res = resorsinol  
Gambar 6. Difraktogram praformaldehida dan resorsinol.



**Keterangan** IND-AT = indulin-AT; ISL = lignin isolat  
Gambar 7. Difraktogram lignin dan resorsinol.

Lignin yang semula mencirikan sebagai bentuk diagram dengan pita puncak yang homogen (Gambar 7), menunjukkan adanya ketidakteraturan ikatan antara zat penyusun dalam lignin, dan mencirikan bahwa lignin isolat berwujud amorf, setelah direaksikan nampak diagram pita mengalami perubahan bentuk, yakni dengan munculnya puncak-puncak pita, yang mencirikan wujud kristalin yang lebih teratur, sebagai hasil reaksi kopolimerisasi lignin dengan resorsinol dan formaldehida (Gambar 8).

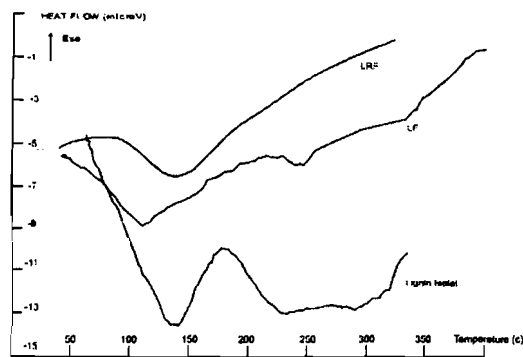


Gambar 8. Difraktogram resin LRF.

Munculnya pita-pita puncak di daerah  $2\theta$  sekitar  $23,315\text{--}25,240^\circ$  dan  $31,795\text{--}33,670^\circ$  pada diagram pita LRF, mengindikasikan terjadinya reaksi antara formaldehida (yang semula muncul di daerah  $2\theta$  sekitar  $22,860^\circ$ ), dan resorsinol (yang semula muncul di daerah  $2\theta$  sekitar  $18,095\text{--}24,945^\circ$ ) dengan lignin tersebut.

Pita-pita puncak tersebut juga mencirikan bahwa resin LRF memiliki bentuk kristalin dengan jarak ikatan yang beraturan, pada daerah  $2\theta$  sekitar  $23,315\text{--}25,240^\circ$  dan  $31,795\text{--}33,670^\circ$ .

Hasil pencirian lebih lanjut dengan peng analisis termal diferensial lebih mempertegas hasil pencirian dengan spektrometer inframerah dan difraksi sinar-X. Pada Gambar 9 ditunjukkan pola perubahan suhu transisi fase pelelehan maupun suhu akibat reaksi dekomposisi dari lignin, lignin formaldehida (LF) dan lignin resorsinol formaldehida (LRF).



*Keterangan: LF = lignin formaldehida  
LRF = lignin resorsinol formaldehida,*

Gambar 9. Termogram lignin, LF dan LRF.

Lignin isolat yang semula memiliki suhu transisi fase pelelehan sekitar  $138^{\circ}\text{C}$  dengan suhu akibat dekomposisi pada  $228^{\circ}\text{C}$ , setelah dikondensasi dengan formaldehida menjadi resin lignin formaldehida, yang memiliki suhu transisi fase pelelehan sekitar  $127^{\circ}\text{C}$  dengan suhu akibat dekomposisi pada  $246^{\circ}\text{C}$ , selanjutnya bila lignin dikopolimerisasi dengan resorsinol dan formaldehida, menjadi lignin resorsinol formaldehida, ia memiliki suhu transisi fase pelelehan sekitar  $143^{\circ}\text{C}$  dengan suhu akibat dekomposisi pada  $375^{\circ}\text{C}$ .

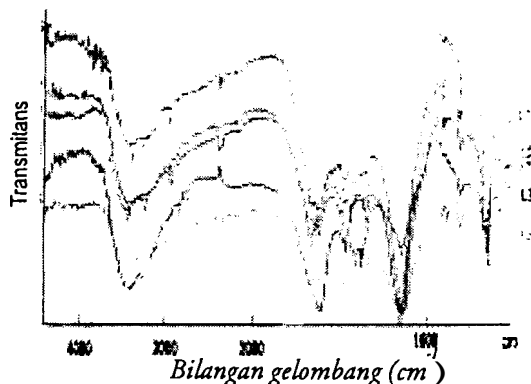
Berdasarkan uraian di atas dapat dikemukakan bahwa bila lignin, resorsinol, dan formaldehida satu sama lain direaksikan pada suhu kamar dan dalam suasana basa, terjadi reaksi kopolimerisasi membentuk kopolimer lignin resorsinol formaldehida, yang memiliki ciri khas pada bilangan gelombang tertentu dalam spektra inframerah, memiliki derajat keteraturan kristal di daerah  $2\theta$  tertentu dalam difraksi sinar-X, dan memiliki suhu transisi fase pelelehan tersendiri pada penganalisis termal diferensial.

## (2) Optimalisasi Resin LRF

Penelaahan komposisi optimum dari resin lignin resorsinol formaldehida dengan spektrometer inframerah memperlihatkan ciri khas (Gambar 10).

Makin ramping (tajam) dan tingginya pita absorpsi pada daerah bilangan gelombang sekitar  $615\text{-}680\text{ cm}^{-1}$  dengan semakin meningkatnya kadar resorsinol sampai pada batas tertentu, dan adanya

puncak tertinggi yang dicapai pada komposisi LRF dengan kadar resorsinol 0,5 mol mengindikasikan bahwa komposisi optimum kopolimer LRF adalah pada nisbah mol lignin:resorsinol:formaldehida = 1:0,5:2.



### Keterangan

$I_1$  = kopolimer LRF dengan kadar resorsinol 0,3 mol  
 $I_2$  = kopolimer LRF dengan kadar resorsinol 0,5 mol  
 $I_3$  = kopolimer LRF dengan kadar resorsinol 0,7 mol  
 $I_4$  = kopolimer LRF dengan kadar resorsinol 0,9 mol  
 $I_5$  = kopolimer LRF dengan kadar resorsinol 1,1 mol  
 PRF = Perekat fenol resorsinol formaldehida

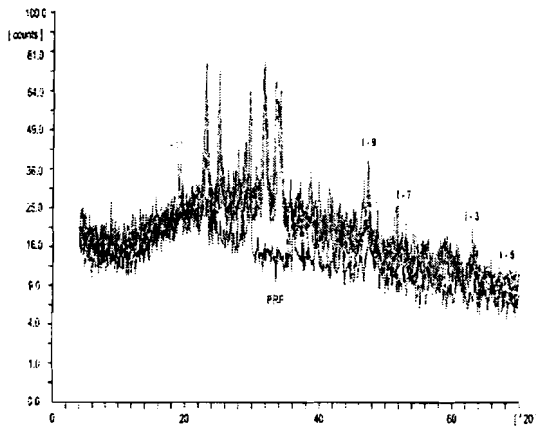
Gambar 10. Spektrum IR resin LRF.

Selanjutnya dengan metode difraksi sinar-X (Gambar 11) nampak adanya pergeseran dalam pembentukan kristalin pada daerah  $2\theta$  tertentu dengan bertambahnya jumlah mol resorsinol dalam komposisi kopolimer LRF.

Pergeseran tersebut mengindikasikan terbentuknya kopolimer dengan derajat kekristalan (*degree of crystallinity*) yang berbeda pada setiap komposisi (Tabel 2).

Polimer yang memiliki derajat kekristalan tinggi memiliki kekuatan dan kekakuan yang lebih tinggi daripada polimer yang memiliki derajat kekristalan rendah (Coward, 1991). Derajat kekristalan tinggi, mengindikasikan bahwa struktur polimer tersebut didominasi oleh rantai-rantai dengan keteraturan yang tinggi, dan memiliki gaya antar rantai cukup kuat, sehingga rantai atau bagian rantai dapat saling mendekati secara sejajar, membentuk daerah berkrystal. Tarikan antar rantai ini terjadi salah satunya diakibatkan oleh ikatan hidrogen.





Gambar 11. Difraktogram resin LRF.

Tabel 2. Derajat kekristalan (%) resin LRF.

No.	Komposisi L:R:F (mol)	Derajat kekristalan (%)	PRF (Standar)
1.	1:0,3:2	69,51	51,53
2.	1:0,5:2	56,27	
3.	1:0,7:2	64,69	
4.	1:0,9:2	69,08	
5.	1:1,1:2	62,90	

*Keterangan* - L = lignin, R = resorsinol, F = formaldehida, PRF = fenol resorsinol formaldehida

Fakta menunjukkan bahwa sangat sedikit polimer yang berkristal sempurna, disebabkan oleh karena panjang dan ketidakteraturan molekul setiap polimer berbeda. Ketidakteraturan dalam struktur rantai, misalnya percabangan, akan menghambat rantai untuk saling mendekati, sehingga kekristalan menjadi terbatas (Cowd, 1991). Namun demikian, tidak berarti bahwa polimer yang memiliki derajat kekristalan lebih rendah tidak menguntungkan, dalam hal resin LRF dalam penggunaannya sebagai perekat kayu, yang lebih diperlukan adalah sifat kenyal (regang) bukan sekedar kekuatan atau kekakuannya, jadi dalam hal ini diperlukan rantai cabang guna menghambat gerakan rantai, sehingga diharapkan setelah terjadi "pematangan" tidak bersifat regas atau rapuh. Berkenaan dengan hal itu, resin LRF dengan komposisi lignin:resorsinol:formaldehida = 1:0,5:2 (mol), dengan derajat kekristalan 56,27% termasuk kategori polimer amorf (Cowd, 1991), terindikasi memiliki sifat relatif lebih baik bila dibandingkan dengan resin LRF lainnya yang dibuat dalam penelitian ini. Resin LRF ini relatif

akan lebih lambat dalam "pematangannya" dibandingkan dengan resin yang memiliki derajat kekristalan yang lebih tinggi, sehingga dalam aplikasinya sebagai perekat diduga akan memiliki *pot life* lebih lama.

Selanjutnya dengan penganalisis termal diferensial diperoleh gambaran yang lebih jelas mengenai komposisi optimum resin LRF.

Cowd (1991) mengemukakan bahwa sifat polimer dapat dipengaruhi oleh suhu transisi pelelehan. Dalam polimer yang amorf, rantai yang amorf ini "membeku" pada kedudukan tertentu, dan polimer bersifat seperti kaca atau rapuh. Dengan naiknya suhu hingga mendekati transisi fase pelelehan, bagian-bagian rantai dapat bergerak. Di atas suhu tersebut polimer, menjadi lebih kenyal. Polimer yang amorf, seperti resin LRF, mempunyai daerah berkristal dengan derajat kekristalan, dan suhu transisi fase pelelehan tertentu.

Berdasarkan termogram yang diperoleh (Gambar 12), dapat ditentukan suhu transisi fase pelelehan dari masing-masing resin LRF yang dibuat, yaitu antara 127-161°C (Tabel 3).

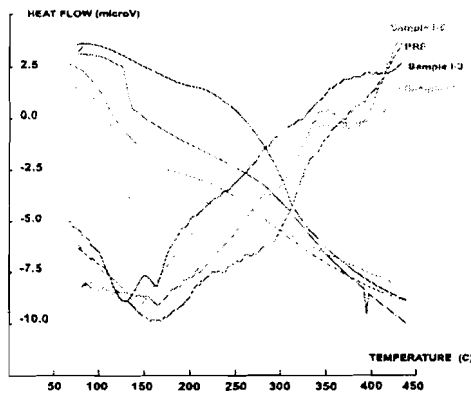
Tabel 3. Suhu fase transisi pelelehan (°C) resin LRF.

No.	Komposisi L:R:F (mol)	Fase transisi pelelehan	PRF
1.	1:0,3:2	127	161
2.	1:0,5:2	161	
3.	1:0,7:2	155	
4.	1:0,9:2	143	

*Keterangan*: L = lignin, R = resorsinol; F = formaldehida; PRF = fenol resorsinol formaldehida

Bila mengacu pada perekat fenol resorsinol formaldehida (PRF), resin yang dibuat dengan nisbah mol lignin:resorsinol:formaldehida = 1:0,5:2 memiliki suhu fase transisi pelelehan yang sama (161°C).

Dengan demikian diduga bahwa karakter resin tersebut akan mirip dengan PRF, dan dapat dikemukakan bahwa komposisi resin lignin resorsinol formaldehida dicapai pada nisbah mol lignin:resorsinol:formaldehida = 1:0,5:2.



Gambar 12. Termogram resin LRF.

### 3) Sifat Fisis-Kimia Resin LRF

Dalam beberapa hal resin LRF yang dibuat pada komposisi nisbah mol lignin:resorsinol:formaldehida = 1:0,5:2, menyerupai sifat fisis-kimia dari resin fenol resorsinol formaldehida (Tabel 4).

Resin LRF yang diperoleh memiliki sifat fisis berupa cairan berwarna coklat kehitaman dan berbau khas fenol. Warna yang dihasilkan diduga berasal dari perpaduan lignin isolat dengan resorsinol, sedangkan bau khas fenol diduga berasal dari resorsinol, yang merupakan senyawa fenolik mengandung 1 gugus hidroksi tambahan pada inti aromatik, membentuk posisi meta.

Penggunaan resorsinol dalam kopolimerisasi lignin semakin menambah sempurnanya reaksi, sehingga molekul-molekul yang terkandung dalam resin makin meningkat. Dengan demikian diharapkan akan semakin banyak molekul-molekul perekat yang akan bereaksi dengan kayu ketika berlangsung proses perekatan, dan tercipta keteguhan rekat yang lebih baik.

Waktu tergelatin mewakili potlife resin. Resin LRF yang dibuat memiliki waktu tergelatin lebih panjang daripada perekat PRF yang digunakan sebagai pembanding. Hal ini mengisyaratkan bahwa resorsinol tercampok pada lignin yang dimetilolasi pada kondisi basa sehingga terbentuk rantai cabang, seperti yang disinyalir oleh Pizzi (1994), dan berakibat pada terbatasnya kekristalan LRF, sehingga resin ini lebih amorf daripada PRF. Dengan demikian potlife resin LRF menjadi lebih lama daripada PRF, dan lebih lama daripada potlife perekat berbasis lignin pada umumnya yang menurut Pizzi (1994), kondisi seperti tersebut di atas bisa diterima untuk keperluan industri,

Tabel 4. Ikhtisar Sifat Fisis-kimia Resin LRF<sup>1)</sup>.

No.	Pengujian	Resin LRF	Resin PRF <sup>2)</sup>
1.	Keadaan	(+)	(+)
2.	Bahan Asing	(-)	(-)
3.	Gel. Time (menit)	128	85
4.	Kadar resin padat (%)	38,11	57,03
5.	Viskositas (25 ± 1°C), (poise)		
6.	Keasaman (pH)	1,0	3,4
7.	Bobot jenis	11,0	8,0
8.	Formaldehida bebas (%)	1,16	1,15
9.	Keteguhan rekat (kg/cm <sup>2</sup> ):		
	-Kering	117,47	158,40
	-Basah	51,82	76,80

#### Keterangan:

\*) Rata-rata h r i 4 kali ulangan

\*\*) Fenol Resorsinol Formaldehida di perdagangan

(+) Cairan berwarna coklat sampai hitam dan berbau khas

(-) Tidak ada

karena melebihi nilai minimum potlife yang dianjurkan (± 88 menit).

Kekentalan resin LRF dibuat sedemikian rupa dan diupayakan lebih encer, dan pH resin sengaja dikondisikan basa (pH>7) dengan tujuan memperlambat reaksi pembentukan ikatan hidrogen, sehingga resin cair stabil dalam waktu relatif lama sewaktu penyirpanan (potlife).

Kadar formaldehida bebas menggambarkan adanya kelebihan formaldehida yang tidak bereaksi dalam pembentukan polimer. Penetapan ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui kelebihan formaldehida yang tidak bereaksi dalam pembentukan resin LRF, dan tingkat emisi yang kemungkinan terjadi sebagai akibat formaldehida yang dilepaskan.

Hasil pengujian menunjukkan bahwa formaldehida bebas yang terjadi dalam reaksi kondensasi LRF, lebih tinggi daripada perekat PRF, namun demikian masih dalam batas aman karena kurang dari 3% seperti yang disyaratkan bagi perekat yang mengandung formaldehida (SNI, 1998).

Nilai keteguhan geser tekan kayu lamina kempas yang direkat dengan resin LRF pada komposisi optimum, yang diuji dalam kondisi

kering, maupun basah rata-rata lebih rendah daripada perekat PRF, namun bila mengacu kepada standar yang dianjurkan oleh Tahir et al. (1988), kayu lamina yang menggunakan perekat LRF ini memenuhi syarat, karena masing-masing lebih dari 55 kg/cm<sup>2</sup> dan 41 kg/cm<sup>2</sup>. Sementara bila mengacu kepada ketentuan standar Jepang (JAS, 1996), kayu lamina yang diuji dalam kondisi kering memenuhi syarat, karena nilainya lebih dari 96 kg/cm<sup>2</sup>.

Berdasarkan uraian di atas, dapat dikemukakan bahwa resin lignin resorsinol formaldehida hasil penelitian ini mempunyai sifat serupa dengan perekat fenol resorsinol formaldehida, dan berpotensi untuk bisa diaplikasikan sebagai substitusi perekat impor.

#### 4. SIMPULAN

Lignin isolat yang berasal dari lindi hitam dapat dikopolimerisasi dengan resorsinol dan formaldehida dalam kondisi basa membentuk resin lignin resorsinol formaldehida. Berdasarkan karakteristiknya, komposisi optimum resin lignin resorsinol formaldehida adalah pada nisbah mol L:R:F = 1:0,5:2, dengan ciri spesifik spektrum inframerah pada bilangan gelombang sekitar 3410 cm<sup>-1</sup> (vibrasi regangan OH), 1570 cm<sup>-1</sup> (vibrasi regangan aromatik), dan 1145 cm<sup>-1</sup> (regangan eter). Resin ini berbentuk amorf dengan ikatan yang relatif beraturan dan derajat kekristalan 56,27%, pada daerah 2θ sekitar 23,315-25,240° dan 31,795-33,670°, serta memiliki suhu transisi fase pelelehan 143°C dan suhu akibat dekomposisi 375°C.

Keteguhan rekat kayu lamina yang menggunakan perekat LRF memenuhi standar yang dianjurkan oleh Tahir et al (1988), sedangkan bila mengacu kepada standar Jepang (JAS, 1996) hanya pada kondisi kering saja yang memenuhi syarat.

Resin lignin resorsinol formaldehida hasil kopolimerisasi ini berpotensi bisa diaplikasikan sebagai substitusi perekat kayu lamina dengan proses kempa dingin, yang selama ini masih diimpor.

#### DAFTAR PUSTAKA

- Cowd, M.A. (1991). *Kimia Polimer*. Penerbit ITB, Bandung
- Garrat, A. (1964), Penguin Science Survey. Penguin Books Ltd., Harmondsworth, pp. 62-77.

- Falkehag S.I. 1975. 'Effects of Phenol-Formaldehyde Copolymer on Gluebond Performance of Lipin-Phenolic Resin Systems' dalam *Adhesives from renewable resources*, R.W. Hemingway, A. H. Conner dan S. J. Branham (editor). ACS Symposium. American Chemical Society: New Orleans, Washington DC.
- Iguchi, M. (1997), *Practice of Polymer X-Ray Diffraction (Short-course text-book)*. Bandung Institute of Technology, Bandung.
- Japanese Agricultural Standard (JAS). (1996), 'Japanese Agricultural Standard for Structural Glued laminated Timber'. Notification No.111 of the Ministry Agriculture, Forestry and Fisheries Januari 29, 1996. JPIC. Tokyo.
- Pizzi, A. (1983), *Wood Adhesives Chemistry and Technology*. Marcel Dekker, New York.
- \_\_\_\_\_. 1994. *Advanced Wood Adhesives Technology*. Marcer Dekker. New York.
- Roffael, E. (1993), 'Formaldehyde Release from Particleboard and Other Wood Based Panels'. *Malayan Forest Record* No. 37 - Forest Research Institute Malaysia (FRIM), Kepong - Kuala Lumpur.
- Santoso, A., 'Surdiding Ruhendi, Yusuf Sudo Hadi, dan Suminar S. Achmadi. (2001a), *Kualitas Kopolimer Lignin Fenol Formaldehida sebagai Perekat Kayu Lapis*'. *Majalah Polimer Indonesia*, Vol. 4 (1-2), pp 19-25.
- \_\_\_\_\_, Surdiding Ruhendi, Yusuf Sudo Hadi, dan Suminar S.Achmadi. (2001b), 'Pengaruh komposisi perekat lignin resorsinol formaldehida terhadap emisi formaldehida dan sifat fisis-mekanis kayu lamina'. *Jurnal Teknologi Hasil Hutan*, Vol. XIV (2), pp. 7-15.
- Standar Nasional Indonesia (SNI). (1998), *Kumpulan SNI Perekat*. Badan Standardisasi Nasional, Jakarta.
- Syafii, W. (1999), 'Pemanfaatan Lignin sebagai Bahan Baku Perekat untuk Pembuatan Papan Partikel Kayu Mangium (*Acacia mangium* Willd.)'. *Jurnal Ilmu Pertanian Indonesia*, Vol. 8 (2), pp 26 - 32.
- Tahir P.Md., M.H Sahri and Z, Ashari. (1998), 'Gluability of less Used and Fast Growing Tropical Platation Hardwood Species'. Faculty of Forrestry Universiti Pertanian Malaysia. Selangor, Malaysia.

- Tajang A.U. (2001), 'Kopolimerisasi Kationik Monomer Aksasolin'. *Majalah Polimer Indonesia*, Voi. 4 (1-2), pp. 45-52.
- Utama, M., T. Ritonga, and A. Nurhadi. (2002), 'Characteristics of Paraserianthes falcataria-Polymethyl Methacrylate Composite Prepared

by Gamma Irradiation Technique. *Proceedings*. LIPI-JSPS Core University Program In The Field of Wood Science. The Fourth International Wood Science **Symposium**: 2-5 September 2002, Serpong, Indonesia.

Direrima: 17 Desember 2003

Diserujui untuk diterbitkan: 19 Mei 2004