

**PENGGUNAAN KARAGENAN HASIL MODIFIKASI  
ENZIMATIS SEBAGAI PENGISI TABLET**

**SKRIPSI**

**SALSHA NURUL ANNISA  
A191038**



**SEKOLAH TINGGI FARMASI INDONESIA  
YAYASAN HAZANAH  
BANDUNG  
2023**

**PENGGUNAAN KARAGENAN HASIL MODIFIKASI  
ENZIMATIS SEBAGAI PENGISI TABLET**

**SKRIPSI**

Sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Farmasi

**SALSHA NURUL ANNISA  
A191038**



**SEKOLAH TINGGI FARMASI INDONESIA  
YAYASAN HAZANAH  
BANDUNG  
2023**

**PENGGUNAAN KARAGENAN HASIL MODIFIKASI  
ENZIMATIS SEBAGAI PENGISI TABLET**

**SALSHA NURUL ANNISA  
A191038**

**Agustus 2023**

**Disetujui oleh :**

**Pembimbing**



**apt. Rival Ferdiansyah, M.Farm**

**Pembimbing**



**Dr. apt. Revika Rachmaniar, M.Farm**

Kutipan atau saduran baik sebagian ataupun seluruh naskah, harus menyebut nama pengarang dan sumber aslinya, yaitu Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.

*Skripsi ini dipersembahkan kepada Sang Pencipta Allah SWT, Nabi Muhammad SAW, mamah (Enung Nurliana), bapak (Dana Sutisna), aa (Moch. Bhakti Robiyana), adek (Dinda Rahma Annisa), Shanum Bahira Hana Bhakti, sahabat (geng umroh 2024) dan seluruh keluarga tersayang yang selalu menjadi inspirasi, penguat, dan yang selalu mendukung, mendampingi, serta menyemangati setiap saat.*

## ABSTRAK

Karagenan hasil ekstraksi menggunakan variasi alkali NaOH, KOH, Ca(OH)<sub>2</sub> di modifikasi enzimatis untuk diaplikasikan sebagai bahan pengisi tablet. Klorfeniramin maleat. Modifikasi enzimatis digunakan untuk memotong rantai polimer karagenan menjadi lebih pendek. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui apakah karagenan hasil modifikasi enzimatis dapat digunakan sebagai bahan pengisi tablet dengan rentang konsentrasi yang terbaik. Dalam penelitian ini karagenan yang sudah dimodifikasi enzimatis dilakukan karakterisasi fisika padatan yaitu *true density*, *solid fraction*, *tensile strength bonding index*, *BFI*, dan evaluasi massa siap kempa, pembuatan tablet menggunakan metode kempa langsung serta evaluasi mutu sediaan tablet. Hasil evaluasi dari fisika padatan *true density* (1,87-1,93), *solid fraction* (0,20-0,24), *tensile strength* (0,0556-0,0568), *bonding index* (0,0108-0,0112), *BFI* (0,1017-0, 1150) dan semua formula menunjukkan bahwa untuk evaluasi massa siap kempa laju alir, sudut istirahat, bobot jenis nyata, bobot jenis ruah, bobot jenis mampat memenuhi syarat kecuali pada pengujian kompresibilitas di semua formula. Kemudian untuk evaluasi tablet, seluruh formula memenuhi syarat kecuali pada F3 – F5 pada evaluasi uji kerapuhan (friabilitas dan friksibilitas) dan uji kekerasan tablet. Kombinasi karagenan hasil modifikasi enzimatis dari ketiga alkali yaitu NaOH, KOH, dan Ca(OH)<sub>2</sub> dengan avicel PH 102 variasi konsentrasi dapat digunakan sebagai bahan pengisi, baik dengan perbandingan konsentrasi 2:1 (F2).

**Kata Kunci** : Karagenan, Modifikasi enzimatis, Bahan pengisi, Tablet, Kempa Langsung

## ABSTRACT

*The extracted carrageenan using variations of alkaline NaOH, KOH, Ca(OH)<sub>2</sub> was modified enzymatically to be applied as a tablet filler. Chlorpheniramine maleate. Enzymatic modification is used to cut the carrageenan polymer chains shorter. The purpose of this study was to determine whether carrageenan as a result of enzymatic modification can be used as a tablet filler with the best concentration range. In this study, the enzymatically modified carrageenan was characterized by solid physics, namely true density, solid fraction, tensile strength bonding index, BFI, and evaluation of ready-to-compress mass, manufacture of tablets using the direct compression method and evaluation of the quality of tablet preparations. Evaluation results from solid physics true density (1.87-1.93), solid fraction (0.20-0.24), tensile strength (0.0556-0.0568), bonding index (0.0108-0, 0112), BFI (0.1017-0, 1150) and all formulas show that for the evaluation of ready-to-compressed mass flow rate, angle of repose, real density, bulk density, incompressible density meet the requirements except for the compressibility test in all formulas. Then for tablet evaluation, all formulas met the requirements except for F3 – F5 in the evaluation of friability and tablet hardness tests. The combination of carrageenan as a result of enzymatic modification of the three alkalis, namely NaOH, KOH, and Ca(OH)<sub>2</sub> with avicel PH 102 in various concentrations can be used as a filler, either with a concentration ratio of 2:1 (F2).*

**Keywords :** *Carrageenan, Enzymatic Modification, Excipients, Tablets, Direct Compression*

## KATA PENGANTAR

*Bismillahirrahmanirrahim,*

Puji dan syukur penulis panjatkan kehadirat Allah SWT atas segala berkah rahmat dan ridho-Nya penulis dapat menyelesaikan penelitian dan penulisan skripsi yang berjudul **“Penggunaan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis Sebagai Pengisi Tablet”** .

Penelitian dan penulisan skripsi ini dilakukan untuk memenuhi salah satu syarat untuk mendapatkan gelar sarjana pada Program Studi Sarjana Farmasi Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.

Penulis mengucapkan terima kasih sebesar-besarnya kepada dosen pembimbing apt. Rival Ferdiansyah, M.Farm dan Dr. apt. Revika Rachmaniar, M.Farm., atas bimbingan, nasihat, dukungan, serta pengorbanan yang diberikan. Pada kesempatan ini, tidak lupa penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Dr. apt. Adang Firmansyah, M.Si., selaku Ketua Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia,
2. Dr. apt. Diki Prayugo, M.Si., selaku Wakil Ketua I Bidang Akademik,
3. Dr. apt. Wiwin Winingsih, M.Si., selaku Ketua Program Studi Sarjana Farmasi,
4. Dr. apt. Sani Nuraela Fitriansyah, M.Si., selaku Dosen Wali yang telah banyak memberikan bimbingan dan arahan kepada penulis,
5. Seluruh staf dosen, staf administrasi, asisten laboratorium, laboran serta seluruh karyawan Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia, terimakasih atas ilmu, pengalaman, dan bantuan yang telah diberikan selama penulis menjalani perkuliahan dan penelitian.
6. Teman-teman angkatan 2019 terutama kelas Reguler Pagi A yang selalu mendukung dan saling menyemangati penulis selama kuliah di Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
7. Semua pihak yang tidak dapat disebutkan satu per satu yang telah membantu baik secara langsung maupun tidak langsung selama menyelesaikan penelitian dan penulisan skripsi ini.

Dengan kerendahan hati, penulis mengharapkan masukan berupa kritik dan saran yang bersifat membangun untuk perbaikan di masa yang akan datang. Semoga tugas akhir ini akan memberikan manfaat bagi penulis sendiri dan juga bagi pihak lain yang berkepentingan.

Bandung, Agustus 2023  
Penulis



## DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN.....	i
KUTIPAN .....	ii
PERSEMBAHAN .....	iii
ABSTRAK .....	iv
<i>ABSTRACT</i> .....	v
KATA PENGANTAR .....	vi
DAFTAR ISI.....	vii
DAFTAR TABEL .....	ix
DAFTAR GAMBAR .....	x
DAFTAR LAMPIRAN .....	xi
<b>BAB I</b> <b>PENDAHULUAN</b> .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Identifikasi Masalah .....	2
1.3 Tujuan Penelitian.....	2
1.4 Kegunaan Penelitian.....	3
1.5 Tempat dan Waktu Penelitian .....	3
<b>BAB II</b> <b>TINJAUAN PUSTAKA</b> .....	4
2.1 Rumput Laut <i>Eucheuma cottoni</i> .....	4
2.2 Karagenan.....	4
2.2.1 Definisi Karagenan.....	4
2.2.2 Sifat Dasar Karagenan.....	5
2.2.3 Manfaat Karagenan .....	6
2.3 Ekstraksi Karagenan.....	6
2.4 Hidrolisis Enzimatis .....	7
2.4.1 Modifikasi Hidrolisis Enzimatis Pada Ikatan Glikosidik..	7
2.4.2 Waktu Inkubasi Proses Enzimatis.....	8
2.5 Enzim Alfa Amilase .....	8
2.6 Tablet .....	9
2.7 Bahan Pengisi (filler) .....	10
2.8 Evaluasi Tablet.....	11
<b>BAB III</b> <b>TATA KERJA</b> .....	24
3.1 Alat.....	24

3.2	Bahan.....	24
3.3	Metode Penelitian.....	24
BAB IV	HASIL DAN PEMBAHASAN .....	30
4.1	Uji Karakteristik Karagenan.....	30
4.2	Formulasi Tablet .....	31
4.3	Evaluasi Massa Siap Kempa .....	32
4.4	Evaluasi Tablet.....	36
BAB V	SIMPULAN DAN ALUR PENELITIAN SELANJUTNYA .....	44
5.1	Simpulan.....	44
5.2	Alur Penelitian Selanjutnya.....	44
	DAFTAR PUSTAKA.....	45
	LAMPIRAN .....	48

## DAFTAR TABEL

Tabel	halaman
2.1	Tabel Syarat Keseragaman Bobot.....22
3.1	Formula Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Variasi Konsentrasi Karagenan Hasil Modifikasi Sebagai Bahan Pengisi perhitungan rendemen..... 24
4.1	Karakteristik Sifat Fisika Padatan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, dan Ca(OH) <sub>2</sub> 180 Menit..... 31
4.2	Formula Tablet Variasi Konsentrasi Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis Sebagai Bahan Pengisi Untuk Tablet Klorfeniramin Maleat ..... 33
4.3	Hasil Uji Keseragaman Ukuran Dengan Karagenan Hasil Modifikasi NaOH.....38
4.4	Hasil Uji Keseragaman Ukuran Dengan Karagenan Hasil Modifikasi KOH ..... 38
4.5	Hasil Uji Keseragaman Ukuran Dengan Karagenan Hasil Modifikasi Ca(OH) <sub>2</sub> ..... 38
4.6	Hasil Uji Keseragaman Ukuran Perbandingan ..... 38
4.7	Hasil Uji Keseragaman Bobot Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, dan Ca(OH) <sub>2</sub> ..... 39
4.8	Hasil Uji Kekerasan Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, Ca(OH) <sub>2</sub> ..... 40
4.9	Hasil Uji Kerapuhan Friabilitas Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, Ca(OH) <sub>2</sub> dan Standar..... 40
4.10	Hasil Uji Kerapuhan Friabilitas Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, Ca(OH) <sub>2</sub> dan Standar.....41
4.11	Hasil Uji Waktu Hancur Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Hasil Modifikasi Enzimatis NaOH, KOH, Ca(OH) <sub>2</sub> dan Standar. .... 42

## DAFTAR GAMBAR

Gambar	halaman
2.1 Mekanisme Hidrolisis Enzimatik Alfa Amilase pada Ikatan Glikosidik.....	19
4.1 Hasil Uji Laju Alir Tablet Klorfeniramin maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi .....	33
4.2 Hasil Uji Sudut Istirahat Tablet Klorfeniramin maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi.....	34
4.3 Hasil Bobot Jenis Nyata Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi.....	35
4.4 Hasil Uji Bobot Jenis Ruah Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi.....	35
4.5 Hasil Uji Bobot Jenis Mampat Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi.....	36
4.6 Hasil Uji Kompresibilitas Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Variasi Konsentrasi Bahan Pengisi.....	37
4.7 Hasil Uji Disolusi Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan NaOH.....	43
4.8 Hasil Uji Disolusi Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan KOH.....	43
4.9 Hasil Uji Disolusi Tablet Klorfeniramin Maleat dengan Karagenan Ca(OH) <sub>2</sub> .....	44

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	halaman
1. Dokumen bahan yang digunakan .....	49
2. Hasil karakteristik fisik padatan karagenan.....	54
3. Hasil evaluasi masa siap cetak.....	58
4. Hasil evaluasi tablet.....	60
5. Alur kegiatan penelitian.....	73

## DAFTAR PUSTAKA

- Anggadiredja, J.T., Zalnika, A., Purwoto, H., dan Istini, S. (2008) 'Rumput Laut', *Jakarta: Penebar Swadaya*. [Preprint].
- Anggadiredja, J.. *et al.* (2008) *Rumput Laut*. Jakarta: Penebar Swadaya.
- Anisuzzaman, S.. *et al.* (2014) 'Effects of Extraction Process Condition on Semi Refined Carrageenan Produced by using Spray Dryer', *Journal of Applied Sciences*, 14(12), pp. 1283–1288.
- Atmadja, W.S., Kadi, A., Sulistijo., dan Satari, R. (2004) 'Pengenalan Jenis-Jenis Rumput Laut Indonesia', *Jakarta: Puslitbang Oseonologi LIPI* [Preprint].
- Atmadja, W.S., Kadi, A., Sulistijo., dan Satari, R. (2013) 'Pengenalan Jenis-Jenis Rumput Laut Indonesia.', *Jakarta: Puslitbang Oseonologi LIPI* [Preprint].
- Aulton, M.E. (2009) *Pharmacutics: The Science of Dosage from Design*. 2nd ed. Edinburgh ; New York: Churchill Livingstone.
- BeMiller, James, and R.W. (2009) 'Starch: Chemistry and Technology. 3rd Edi.', *New York: Elsevier* [Preprint].
- Bennet and Friedden (2005) 'Cytochemical Aspect of The Effect of Chitosan on Decay of Bell', *Biochemistry and Behavior*, pp. 441–448.
- BPOM (2014) *Pedoman Uji Disolusi dan Tanya Jawab*. Badan POM RI.
- Chapman, V.J., and Chapman, D. j. (2005) 'Seaweeds and Their Uses', *Chapman and Hall. New York* [Preprint].
- Charles J.P Siregar (2010) *Teknologi Farmasi Sediaan Tablet*. Jakarta: Kedokteran EGC.
- CPKelco (2005) 'GENU Carrageenan Book', *Denmark: CP Kelco Inc* [Preprint].
- Depkes RI (2014) *Farmakope Indonesia Edisi V*.
- Depkes RI (2020) *Farmakope Indonesia Edisi VI*.
- Doulabi, A.H. *et al.* (2012) 'Chitosan/Polyethylene Glycol Fumarate Blend Ffilm: Physical and Antibacterial Properties', *Carbohydrate Polymers*, 92, pp. 48–56.
- Dra.Murtini Gloria dan Yetri Elisa (2018) *Teknologi sediaan solid*.
- Ebere Innocent, O. *et al.* (2010) 'Brittle fracture index (BFI) as a tool in the classification, grouping and ranking of some binders used in tablet formulation: Lactose tablets', *Scientific Research and Essays*, 05(5), pp. 500–506.
- Edy, H. J., & Mansauda, K.L. (2020) 'Teknologi dan Formulasi Sediaan Padat', *Klaten: Lakeisha* [Preprint].
- Fardiaz, D. (2005) 'Hidrokoloid', *Bogor: Institut Pertanian Bogor* [Preprint].
- Ferdiansyah, R., C, A.Y. and Abdassah, M. (2017) 'Karakterisasi Kappa Karagenan dari Eucheuma cottonii Asal Perairan Kepulauan Natuna dan Aplikasinya sebagai Matriks Tablet Apung', *Indonesian Journal of Pharmaceutical Science and Technology*, VI(1), pp. 14–26.
- Food Agriculture Organization (1990) 'Training Manual on Gracilaria Culture and Seaweed Processing in China.', *China: Department of Aquatic Products. Ministry of Agriculture*. [Preprint].
- Hadisoewignyo, L. and Fudholi, A. (2013) *Sediaan Solid*. Yogyakarta: Pustaka Pelajar.
- Halik, N. and Mayasari, D. (2022) 'Proceeding of Mulawarman Pharmaceuticals Conferences', (November 2022), pp. 15–17.

- Handayani, R. *et al.* (2022) 'Formulasi dan evaluasi sediaan tablet hisap dari ekstrak etanol biji kopi arabika (*Coffea arabica*.) Java Preanger sebagai antioksidan', *Jurnal Ilmiah Manuntung*, 8(1), pp. 82–88.
- Hiestand, E.N. *et al.* (2010) 'Physical Processes of Tableting', *Journal of Pharmaceutical Sciences*, 66, pp. 510–519.
- Holman, L.E. and Leuenberger, H. (2003) 'The Relationship Between Solid Fraction and Mechanical Properties of Compacts - The Percolation Theory Model Approach', *International Journal of Pharmaceutics*, 46, pp. 35–44.
- Huda, C. and Sari, T.A. (2021) *Teknologi Sediaan Solida: Buku Ajar. Media Nusa Creative (MNC Publishing)*.
- Imeson, A.. (2010) "Carrageenan." In Handbook of Hydrocolloids: Phillips, G.O and William, P.A', *New York: CRS Press* [Preprint].
- Jana T, A. *et al.* (2010) *Manfaat dan Pengolahan Rumput Laut*. Jakarta: Penebar Swadaya.
- Kalalo, T., Yamlean, P.V.Y. and Citraningtyas, G. (2019) 'PENGARUH PENGGUNAAN PATI KULIT NANAS (*Ananas comosus* (L.) Merr.) SEBAGAI BAHAN PENGIKAT PADA GRANUL CTM', *Pharmacon*, 8(1), p. 203. Available at: <https://doi.org/10.35799/pha.8.2019.29255>.
- Kunamneni, A., Permaul, K. and Singh, S. (2005) 'Amylase Production in Solid State Fermentation by The Thermophilic Fungus *Thermomyces Lanuginosus*', *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 100, pp. 168–171.
- Lachman, L., Lieberman, H.A., dan Kanig, J.. (2021) 'Teori Dan Praktik Farmasi Industri I', *Jakarta: Universitas Andalas*, Edisi III.
- Lachman, L., Lieberman, H.A. and Kang, J.L. (2008) *Teori dan Praktek Farmasi Industri*. III. Jakarta: Universitas Indonesia.
- Lamey, K., Schwartz, J. and Muller, F. (2007) 'Development and Evaluation of A Miniaturized Procedure for Determining The Bonding Index: A Novel Prototype for Solid Dosage Formulation Development', *Pharmaceutical Development and Technology*, 8, pp. 239–252.
- Moirano, A.. (2007) 'Sulphated Seaweed Polysaccharides dalam Food Colloids: Graham, MD', *Westport: The AVI Publishing Company Inc.* [Preprint].
- Peranginangin, R., Sinurat, E., dan Darmawan, M. (2013) 'Memproduksi Karagenan Dari Rumput Laut', *Jakarta: Pengolahan Produk dan Bioteknologi Kelautan dan Perikanan*. [Preprint].
- Perez J., Munoz-Dorado J., De-la-Rubia, T and Martinez, J. (2009) 'Biodegradation and biological treatment of cellulose, hemicellulose, and lignin: an overview', *Int Microbiol* [Preprint].
- Rashati, D. and Rohmah, S.M. (2016) 'Uji fisik formulasi tablet floating teofilin dengan matrik HPMC', *Jurnal Ilmiah Kesehatan*, 1(1), pp. 13–19.
- Reed, G. (2018) *Principles Biochemistry*. 7th editio. Glasgow: Blackie Academic and Professional.
- Robert, T (2018) 'Teknologi sediaan solid', *Ponorogo: Wade Group* [Preprint].
- Robert, Tungadi (2018) *Teknologi sediaan solid*. Ponorogo: Wade Group.
- Rowe, R.C., Sheskey, P.J., and Quinn, M.. (2009) 'Handbook of Pharmaceutical Excipients. 6th ed.', *USA: Pharmaceutical Press and American Pharmacists Association* [Preprint].
- Siregar, C.J.. dan W.S. (2008) 'Teknologi Farmasi Sediaan Tablet', *Jakarta:*

- Kedokteran EGC*. [Preprint].
- Suryaningrum, D. (2006) “*Kajian Sifat-Sifat Mutu Komoditi Rumput Laut Budidaya Jenis Eucheuma Cottonii Dan Eucheuma Spinossum.*” Bogor: Institut Pertanian Bogor.
- Syukri, Y (2018) ‘Teknologi Sediaan Obat dalam Bentuk Solid’, *Yogyakarta: Universitas Islam Indonesia*. [Preprint].
- Syukri, Yandi (2018) *Teknologi Sediaan Obat dalam Bentuk Solid, Angewandte Chemie International Edition*, 6(11), 951–952. Yogyakarta: Universitas Islam Indonesia.
- Tari, O. and Peckan, O. (2007) ‘Swelling Activation Energy of k-Carrageenan in Its Gel State: A Fluorescence Study’, *Journal of Applied Polymer Science*, 116, pp. 4165–4168.
- The United States Pharmacopeial Convention (2016a) ‘Basic Methods for Angle of Repose { 1174 } POWDER FLOW’, *The United States of Pharmacopoeia*, 30(60)(6), pp. 293–323.
- The United States Pharmacopeial Convention (2016b) ‘USP 1216 Tablet Friability’, *The United States of Pharmacopoeia*, 32(2), pp. 22–24.
- Towel, A.. (2004) ‘Carrageenan dalam Industrial Gum: Polysacharides and Their Derivats: Whistler, Roy L and Bemiller, James N’, *Landon: Academic Press* [Preprint].
- Tye, C.K.I.M., Sun, C.C. and Amidon, G.E. (2004) ‘Evaluation of The Effects of Tableting Speed on The Relationships between Compaction Pressure, Tablet Tensile Strength, and Tablet Solid Fraction’, *Journal of Pharmaceutical Sciences*, 94, pp. 465–472.
- Uhumwangho, M.U. and Okor, R.S. (2004) ‘Anomalous Effect of Compression Pressure on The Brittle Fracture Tendency of  $\alpha$ -Cellulose Tablets’, *International Journal of Pharmaceutics*, 284, pp. 69–74.
- Wang, N.S. (2009) ‘Experiment no. 5: Starch Hydrolysis by Amylase. Department of Chemical & Biomolecular Engineering.’, *University of Maryland*. [Preprint].
- Williams, R. O. and McGinity, J.W. (2003) ‘The Use of Tableting Indices to Study The Compaction’, *Drug Development and Industrial Pharmacy*, 14, pp. 1823–1844.
- Winarmo, F.. (2007) ‘Teknologi Pengolahan Rumput Laut’, *Jakarta: Pustaka Sinar Harapan* [Preprint].
- Zhao, Y. *et al.* (2005) ‘Superabsorbent Hydrogels from Poly(Aspartic Acid) with Salt-, Temperature- and pH-Responsiveness Properties’, *Polymer*, 46, pp. 5368–5376.