

THE CHARACTERIZATION OF SILICA-ORGANIC XEROGEL FROM GLUCOSE

Muthia Elma^{1)*}, Dwi Rasy Mujiyanti²⁾, Mufidah Nur Amalia²⁾

¹⁾ Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Lambung Mangkurat

²⁾ Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Lambung Mangkurat

* E-mail corresponding author: melma@ulm.ac.id

ARTICLE INFO	ABSTRACT
<p><i>Article history:</i> Received: 16-02-2019 Received in revised form: 22-02-2019 Accepted: 25-03-2019 Published: 15-04-2019</p> <p><i>Keywords:</i> Silica-glucose xerogel Sol-gel process Deconvolution</p>	<p><i>A study of the characterization of silica-organic xerogel from glucose as a template. The purpose of this study was to know the character and structure of the silica-glucose template xerogel to be used as thin-film in membrane making. Xerogels made through this sol-gel process are by using TEOS (tetraethyl orthosilicate); ethanol; nitric acid; ammonia; aquadest and glucose as a template. By molar ratio is 1:38: 0.0007: 0.0003: 5 and 0.25%; 0.5%, 1% w/v glucose as template. The resulting sols are dried in the oven and calcined at a calcination temperature of 400°C (in the xerogel form). The Xerogel is further characterized by using FTIR to determine the functional group changes of each molar ratio of the glucose concentration. The results showed that Si-OH (Silanol) groups were encountered at a wavenumber of 950 cm⁻¹ and Si-O-Si (Siloxane) groups at 1070 cm⁻¹ and 1160 cm⁻¹ wavenumber. Meanwhile, the Si-C group can be encountered at a wavenumber of 760 cm⁻¹ By using the deconvolution method in the fityk application, of the three glucose template concentrations produced the highest silanol amount is at 0.25% glucose concentration as well as the highest siloxane concentration found in the addition of glucose at concentration 0.25%. This shows that it is clear that the combined structure of the silica-glucose matrix will increase with the increased glucose concentration as the template. This carbon bond helps replace the -OH bond in silanol to Si-C bonds. As a result, the structure of the silica matrix will be stronger and helps to maintain the matrix silica structure if applied later as membrane coating.</i></p>

KARAKTERISASI XEROGEL SILIKA-ORGANIK YANG BERASAL DARI GLUKOSA

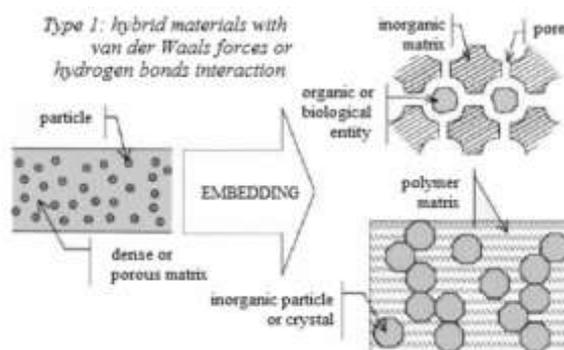
Abstrak- Telah dilakukan penelitian tentang karakterisasi xerogel silika-organik yang berasal dari glukosa sebagai templet. Tujuan dari penelitian ini untuk mempelajari karakter dan struktur dari xerogel silika-glukosa templet yang akan digunakan sebagai thin-film dalam pembuatan membran. Xerogel dibuat melalui proses sol-gel ini adalah dengan menggunakan TEOS (tetraetil ortosilikat); etanol; asam nitrat; ammonia; aquadest dan glukosa sebagai template. Dengan perbandingan molar rasionya adalah 1:38:0.0007:0.0003:5 dan 0.25%; 0,5%, 1% b/v glukosa sebagai templet. Sols yang dihasilkan dikeringkan di oven dan dikalsinasi pada temperatur kalsinasi sebesar 400°C (dalam bentuk xerogel). Xerogel ini selanjutnya dikarakterisasi dengan menggunakan FTIR untuk menentukan perubahan gugus fungsi dari masing-masing konsentrasi molar ratio dari glukosa. Hasil penelitian menunjukkan bahwa gugus Si-OH (Silanol) ditemui pada bilangan gelombang 950 cm⁻¹ dan gugus Si-O-Si (Siloksan) pada bilangan gelombang 1070 cm⁻¹ dan 1160 cm⁻¹. Sementara itu, gugus Si-C bisa ditemui pada bilangan gelombang 760 cm⁻¹. Dengan menggunakan metode dekonvuasi pada aplikasi fityk, dari ketiga konsentrasi glukosa templet dihasilkan jumlah silanol tertinggi berada pada konsentrasi glukosa 0.25% begitu juga dengan konsentrasi siloksan tertinggi dijumpai pada penambahan glukosa pada konsentrasi 0.25%. Ini menunjukkan bahwa terlihat jelas struktur gabungan matriks silika-glukosa akan semakin besar dengan ditingkatkannya konsentrasi glukosa sebagai templet. Ikatan karbon ini membantu menggantri

ikatan –OH pada silanol menjadi ikatan Si-C. Akibatnya struktur silika matriks akan semakin kuat dan sangat membantu mempertahankan struktur silika matriks jika diaplikasikan nantinya sebagai pelapis membran.

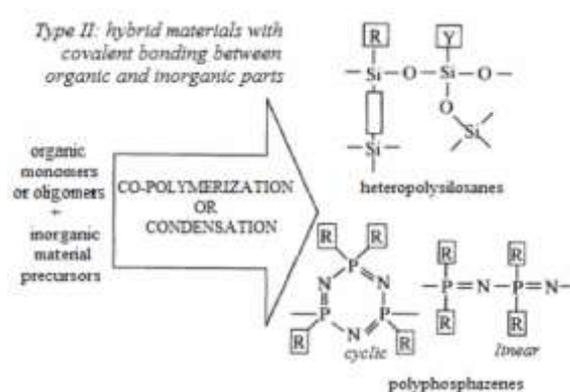
Kata kunci: Xerogel silika-glukosa, proses sol-gel, dekonvolusi

PENDAHULUAN

Peluang dalam kombinasi material organik dan anorganik telah dipelajari dalam beberapa tahun yang lalu. Ditemukannya kehadiran partikel anorganik yang terdispersi secara baik didalam matriks polimer telah terbukti memberikan kemajuan dalam performansi membran. Banyak jenis baru dari material hibrida organik-anorganik yang memiliki potensi untuk dikombinasi guna mendapatkan sifat material hibrida yang diinginkan, meningkatkan sifat mekanik dan termal pada senyawa anorganik dengan kelenturan seperti polimer organik (Zulfikar *et al.*, 2006).



Gambar 1. Material komposit hibrida (tipe I) terbuat dari spesi organik atau organik yang ditanamkan pada matrix inorganik atau organik (Guizard *et al.*, 2001)

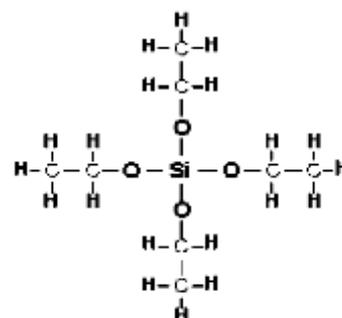


Gambar 2. Material Hibrida (Tipe II) berdasarkan pada polimer organik-anorganik (Guizard *et al.*, 2001)

Cong *et al.* (2007) dan Guizard *et al.* (2001) membagi material hibrida menjadi dua tipe menurut strukturnya : tipe (I), fase polimer

(organik) dan anorganik dihubungkan oleh gaya van der Waals atau ikatan hydrogen (gambar 1) dan tipe (II), fase polimer (organik) dihubungkan oleh ikatan kovalen (gambar 2).

Komposit hibrida organik-anorganik telah menarik banyak perhatian saat ini, karena menunjukkan sifat-sifat yang relatif mudah dikontrol seperti sifat termal, optikal, serta ketahanan mekanik. Hal ini dikarenakan perpaduan sifat dari kedua senyawa baik senyawa anorganik maupun polimer organik. Material hibrida organik-anorganik menjadi topik riset yang banyak dilakukan, fokus kepada aplikasinya seperti material optik, sensor, katalis, adsorben, serta *thin layer* sebagai pelapis membran (Zulfikar *et al.*, 2005). Silika atau kuarsa merupakan mineral yang sangat berlimpah pada permukaan kulit bumi, silika di alam memiliki rumus kimia SiO_2 (silika dioksida). Silika memiliki sifat yang menonjol yaitu memiliki tingkat kekerasan yang tinggi (urutan ke 7 pada skala Mohs) (Azhari dan Aziz, 2016). Salah satu pemanfaatan silika adalah sebagai pelapis pada membran sehingga dapat menyaring substansi atau partikel kecil pengotor pada larutan. Silika dapat diperoleh dengan melarutkan prekursor silika salah satunya Tetraetil ortosilikat (TEOS).



Gambar 3. Struktur TEOS (tetraetil ortosilikat) (Prassas, 2002)

Tetraetil ortosilikat adalah material yang menarik untuk proses pengendapan uap kimia (CVD) pada lapisan-lapisan tipis silika dioksida. Temperatur yang rendah diperlukan dalam proses CVD dan terjadinya reaksi produk yang agresif merupakan keuntungan utama dalam penggunaan TEOS dibanding dengan prekursor lain seperti silane atau tetraklorosilane. Keuntungan lainnya adalah sifat mekanik TEOS dalam proses presipitasi lapisan SiO_2 sangat baik, mudah

terhidrolisis oleh air dan mudah digantikan oleh gugus OH. Selanjutnya silanol (Si-OH) direaksikan antara keduanya atau direaksikan dengan gugus alkoksida non-hidrolisis untuk membentuk ikatan siloksan (Si-O-Si) dan mulailah terbentuk jaringan silika. (M.G.M. Van Der Vis, 1993).

Pada tahun 2011 Pinem & Angela melakukan sintesis dan karakterisasi xerogel hibrida PMMA/TEOT, xerogel ini digunakan sebagai *thin layers* untuk membrane dan hasil yang didapatkan menunjukkan sifat mekanik yang meningkat, memiliki interaksi kimia yang kuat antar komponen, stabilitas kimia yang unggul, performa yang lebih baik. Novita (2010) juga mendapati bahwa kinerja dan ketahanan mekanik membran dengan material hibrida nilon 6,6-kaolin mempunyai performansi yang lebih baik jika dibandingkan dengan membrane dengan material nilon 6,6. Membran silika yang dikarbonisasi dengan P123 juga memiliki kinerja desalinasi yang sangat baik dengan *salt rejection* > 95% sesuai dengan hasil penelitian Elma *et al.* (2015).

Material hibrida dapat dihasilkan dengan menggunakan proses sol-gel, yang menawarkan beberapa kelebihan dibandingkan teknik yang lain. Struktur mikro atau makro pada material hibrida dapat dikontrol dengan mengoptimalkan beberapa parameter sintesis, contohnya pH, konsentrasi, perbandingan air dan alkoksida, suhu, tekanan, jenis katalis dan pelarut pada temperatur rendah (Zulfikar *et al.*, 2006). Proses sol-gel merupakan suatu suspensi koloid dari partikel silika yang digelkan ke bentuk padatan. Menurut Rahaman (1995) suspensi dari partikel koloid pada suatu cairan atau molekul polimer disebut sol. Proses sol-gel dapat digambarkan sebagai pembentukan suatu jaringan oksida melalui reaksi polikondensasi yang progresif dari molekul prekursor dalam medium cair atau merupakan proses untuk membentuk material melalui suatu sol, gelation dari sol dan akhirnya membentuk gel (Schubert and Hüsing, 2000).

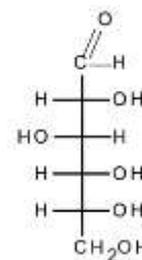
Tahapan pada proses sol-gel terbagi sebagai berikut:

1. Hidrolisis dan kondensasi
2. Gelation (transisi sol-gel)
3. Aging (pertumbuhan gel)
4. Drying (pengeringan)

Pada tahap akhir (pengeringan) akan didapatkan serbuk yang disebut sebagai xerogel. Xerogel adalah bentuk padatan dari gel yang telah dikeringkan, umumnya xerogel memiliki porositas yang tinggi (15-50%) dan luas permukaan yang sangat besar (150-900 m²/g) dengan ukuran pori yang sangat kecil (1-10nm) (Raga, 2016).

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan sebelumnya, maka tujuan dari penelitian ini adalah

mengetahui sifat dan karakteristik xerogel hibrida yang dibuat melalui reaksi antara glukosa (dengan konsentrasi 0.25%, 0.5% dan 1% b/v) dan tetraetil ortosilikat (TEOS) dengan proses sol-gel. Glukosa merupakan salah satu monosakarida sederhana yang paling mudah dikenali. Glukosa yang memiliki rumus C₆H₁₂O₆ berasal dari bahasa Yunani yaitu *glukus* (γλυκύς) yang berarti manis. Glukosa rantai terbuka mempunyai enam rantai karbon, dari C1 sampai C6. Pada C1 terdapat gugus fungsi aldehida, sedangkan C yang lain mengikat gugus hidroksi dan atom hidrogen. Dalam penelitian ini glukosa akan menggantikan peran *pluronic triblock copolymer* (P123) (Elma *et al.*, 2015) sebagai senyawa organik pembentuk material hibrida yang diembankan pada matriks silika.



Gambar 4. Proyeksi Fischer Struktur Glukosa (Fessenden & Fessenden, 1986)

METODE PENELITIAN

Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan pada penelitian ini adalah neraca analitik (*Ohaus*), peralatan gelas (*Pyrex*) seperti gelas piala, kaca arloji, labu takar, gelas ukur, botol kaca; mikro pipet, sudip, pH meter, botol semprot, *hot plate*, cawan petri, oven (*Memmert*), *furnace* (*Thermo Scientific*), cawan *furnace*, pengaduk magnetik; peralatan analisis seperti spektrofotometer *Fourier Transform Infrared* (FTIR) *Shimadzu 8201PC*. Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah Tetraetil ortosilikat (TEOS) (Merck), D(+)-glukosa (Merck), EtOH, Akuades, HNO₃ (Merck), NH₃ (Merck), NaCl (Sigma-Aldrich), *Ceramic Oxide Fabricates* (Australia).

Sintesis Xerogel

TEOS ditimbang sebanyak 18,66 gram lalu dimasukkan secara tetes demi tetes ke dalam Etanol 20 mL pada suhu 0° C selama 5 menit sambil diaduk. HNO₃ 0,00078 N 8,07 gram ditambahkan tetes demi tetes. Lalu direfluks selama 1 jam pada suhu 50° C. NH₃ 141,127 mL yang terlarut dalam etanol ditambahkan pada larutan sol tetes demi tetes. Larutan sol kembali direfluks selama 2 jam pada suhu 50° C. Setelah proses refluks, di ukur pH larutan sol hingga

sekitar $6 \pm 0,1$. Larutan sol dibagi dibagi 5 bagian dengan masing-masing volume 25 mL. Glukosa ditambahkan dengan variasi konsentrasi 0,25%, 0,5%, 1% b/v kedalam larutan sol lalu diaduk selama 45 menit pada suhu ruang. Larutan dikeringkan pada oven bersuhu 60°C selama 4 jam 30 menit untuk mendapatkan gel kering.

Proses Kalsinasi

Gel kering glukosa-Si yang didapatkan digerus menjadi bubuk lalu dikalsinasi dengan variasi suhu 400°C selama 4 jam 30 menit dengan 1 menit penurunan suhu dalam *furnace*.

Analisis

Xerogel hasil sintesis akan dikarakterisasi menggunakan Spektrofotometer FTIR *Shimadzu 8201PC* pada panjang gelombang $400\text{-}4000\text{ cm}^{-1}$.

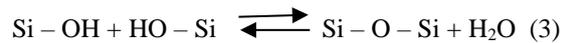
HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil silika sol

Silika sol merupakan hasil akhir pada proses pembuatan sol dengan metode sol-gel dengan mereaksikan *precursor* TEOS (Tetraetil ortosilikat) dalam etanol dan dengan bantuan katalis asam dan basa yaitu asam nitrat dan amonia. Pada pembuatan silika sol, terjadi beberapa tahapan proses yaitu hidrolisis, kondensasi alkohol dan kondensasi air. Pada *reflux* pertama, terjadi pembentukan silanol (Si-OH) pada kondisi asam dengan proses hidrolisis yaitu ketika *precursor* TEOS dilarutkan ke dalam larutan etanol dan akan terhidrolisis dengan penambahan air dan katalis asam nitrat. Hidrolisis ini akan menggantikan gugus alkoksi ($-\text{OR}$) dengan gugus hidroksi ($-\text{OH}$). Selama proses hidrolisis berlangsung, gugus ($-\text{OR}$) dari TEOS akan bereaksi dengan molekul air, sehingga akan membentuk silanol. Adapun reaksinya dapat dilihat pada persamaan berikut ini.



Pada *reflux* kedua, terjadi pembentukan *siloxane* (Si-O-Si) dengan proses kondensasi. Hasil dari reaksi hidrolisis yaitu (Si-OH) akan bereaksi kembali dengan TEOS dan dengan dibantu katalis basa (amonia) sehingga terjadi kondensasi alkohol dan menghasilkan *siloxane*. Pada reaksi ini, etanol yang dihasilkan berlebih sehingga terjadi kembali proses pembentukan *siloxane* dengan reaksi kondensasi air. Adapun reaksi yang terjadi dapat dilihat pada persamaan berikut ini.



Hasil dari proses sol-gel ini akan menghasilkan silika sol yang memiliki nilai pH 6. pH 6 merupakan pH yang optimum karena pada pH ini dapat dihasilkan pori-pori membran yang *mesoporous* (Elma *et al.* 2013), yang mana ukuran porinya lebih besar dibandingkan dengan ukuran molekul air namun lebih kecil bila dibandingkan dengan ukuran molekul garam.

Hasil Karakterisasi Xerogel

Sampel xerogel yang dikalsinasi pada suhu 400°C dengan konsentrasi glukosa 0.25%, 0.5%, 1% (pH 6.37).

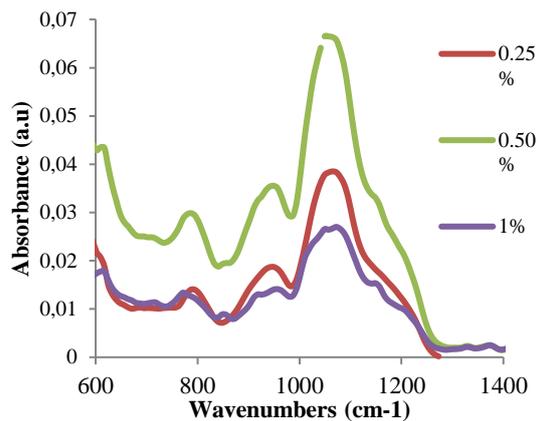


Gambar 5. Sampel xerogel kalsinasi 400°C dengan konsentrasi glukosa 0.25%, 0.5%, 1%.

Gambar 5. menunjukkan setelah dilakukan tahapan kalsinasi pada suhu 400°C , terjadi perubahan warna pada xerogel silika-glukosa menjadi berwarna coklat dan semakin tua dengan bertambahnya konsentrasi glukosa yang ditambahkan. Perubahan warna yang terjadi pada xerogel setelah proses kalsinasi diakibatkan oleh adanya proses pembakaran karbon yang berasal dari glukosa. Semakin besar konsentrasi glukosa pada sol dan semakin tinggi temperatur kalsinasi maka warna dari xerogel akan semakin gelap. Tujuan dilakukannya tahapan kalsinasi ini adalah untuk mengetahui efek temperatur pada sifat kimia maupun sifat fisik sol silika-glukosa.

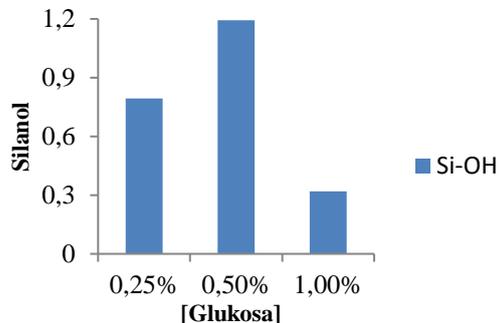
Hasil FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) Xerogel

FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) digunakan untuk menganalisa kelompok gugus fungsi pada suatu persenyawaan, persenyawaan yang dianalisa pada artikel ini adalah sampel xerogel. Gugus *silanol* dan *siloxane* diketahui dapat mempengaruhi ukuran pori membran, mengingat tujuan pembuatan xerogel ini adalah untuk digunakan sebagai thin film pelapis membran, sehingga penting untuk mengetahui ada tidaknya kedua gugus tersebut (Elma *et al.*, 2015). Dari hasil analisa FTIR xerogel didapatkan grafik seperti pada Gambar 6, berikut:

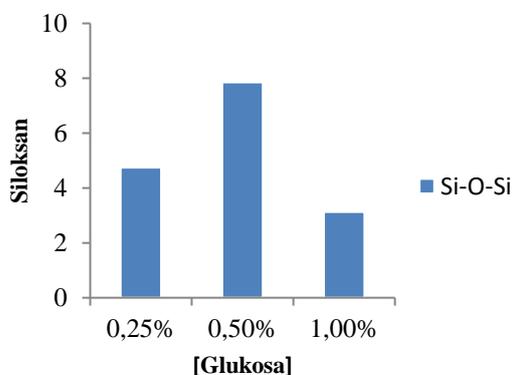


Gambar 6. Sampel xerogel tanpa kalsinasi dengan konsentrasi glukosa 0.25%, 0.5%, 1%, 5% dan 10%

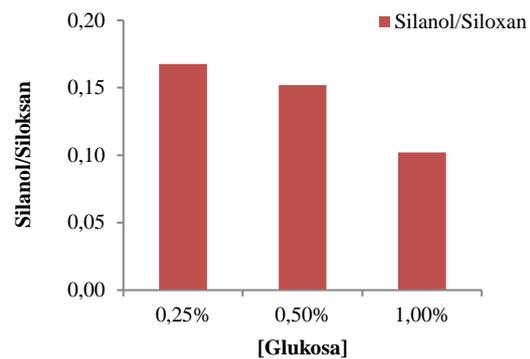
Pada sampel xerogel dapat dilihat terdapat 4 puncak yang masing-masing menandakan adanya gugus Si-O-Si (*siloxane*) pada panjang gelombang 1070 cm⁻¹ dan 1160 cm⁻¹, gugus Si-OH (*silanol*) pada panjang gelombang 950 cm⁻¹ serta gugus Si-C yang muncul disekitar 760 cm⁻¹. Untuk mengetahui perbandingan jumlah dari tiap senyawa dapat dilakukan perhitungan luas area masing-masing peak dengan menggunakan program Fityk yang ditunjukkan pada Gambar 7-9.



Gambar 7. Luas Area Silanol pada sampel xerogel 400°C.



Gambar 8. Luas Area Siloxsan pada sampel xerogel 400°C.



Gambar 9. Data Perbandingan Luas Area Silanol dan Siloxsan.

Gambar 9. menunjukkan perbandingan *silanol/siloxane* pada xerogel Si-Glukosa 400°C. Perbandingan *silanol/siloxane* didapatkan dari *ploting* data FTIR menggunakan program Fityk, yang kemudian dari *ploting* data tersebut akan diketahui luas area untuk masing-masing *silanol* dan *siloxane*. Dari data diketahui jika tersebut dapat disimpulkan bahwa nilai *silanol/siloxane* pada xerogel 400°C semakin rendah dengan, bertambahnya konsentrasi glukosa. Hal ini menunjukkan gugus *silanol* dalam matriks silika akan semakin sedikit, dimana gugus *silanol* akan mempengaruhi kepada ukuran pori yang kecil jika xerogel diaplikasikan pada membran (Elma et al., 2015).

KESIMPULAN

Pengaruh konsentrasi penambahan glukosa pada menghasilkan perbandingan siloxsan/Si-C yang semakin besar sebaliknya nilai silanol/siloxsan dan silanol/Si-C semakin rendah seiring dengan semakin tingginya konsentrasi glukosa yang ditambahkan. Hasil karakterisasi xerogel pada penelitian ini digunakan sebagai *thin layer* pada pembuatan membran. Semakin tinggi nilai silanol/siloxsan akan menghasilkan membran dengan pori yang semakin kecil dan sebaliknya.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada KURITA-AIT Research Grant 2017 dan Direktorat Penelitian dan Pengabdian kepada Masyarakat, Kementerian Riset Teknologi dan Pendidikan Tinggi melalui Hibah Pasca Doctor tahun 2017-2018.

DAFTAR PUSTAKA

AZHARI., AND M. AZIZ. 2016. Sintesis dan Karakterisasi Material Berpori Berbasis

- Mineral Silika Pulau Belitung. *Jurnal Teknologi Mineral dan Batubara* No.3 12:161-170.
- CONG, H., M. RADOSZ., B.F. TOWLER & Y. SHEN. 2007. Polymer-Inorganic Nanocomposite Membranes for Gas Separation. *Separation and Purification Technology* 55: 281-291.
- ELMA, M., D.K. WANG., C. YACOU & J.C.D DA COSTA. 2015. *Interlayer-Free Hybrid Organo-Silica Membranes Based TEOS and TEVS For Water Desalination*. International Conference on Oleo and Petrochemical Engineering, Pekanbaru.
- FESSENDEN, R.J AND J.S. FESSENDEN. 1986. *Kimia Organik Dasar*. Edisi ke-3. Jilid 1. Terjemahan oleh A.H. Pudjaatmaka. Erlangga, Jakarta.
- GUIZARD, C., A. BAC., M. BARBOIU & N. HOVNANIAN. 2001. Hybrid Organic-Inorganic Membranes With Specific Transport Properties – Applications In Separation And Sensors Technologies. *Sep. Purif. Tech* 25: 167-180.
- M.G.M. VAN DER VIS, E. CORDFUNKE., & R. KONINGS. 1993. The Thermodynamic Properties of Tetraethoxysilane (TEOS) and an Infrared Study of its Thermal Decomposition. *Journal de Physique IV Colloque* 03:75-82.
- NOVITA, R.L. 2010. *Analisis Pengaruh Komposisi Kaolinit pada Sifat-Sifat Kristalinitas, Permeabilitas dan Selektivitas Membran Hibrid Nilon 6,6- Kaolin*. Skripsi S-1 Jurusan Kimia. Universitas Riau, Pekanbaru.
- PINEM, J.A & R. ANGELA. 2011. Sintesis dan Karakterisasi Membran Hibrid PMMA/TEOT: Pengaruh Konsentrasi Polimer. *Pengembangan Teknologi Kimia untuk Pengolahan Sumber Daya Alam Indonesia*. Prosiding Seminar Nasional Teknik Kimia “Kejuangan”. Yogyakarta. ISSN 1693 – 4393.
- PRASSAS, M. 2002. *Silica Glass from Aerogel*. <http://www.solgel.com/articles/april01/aerog.htm> (diakses tanggal 23 September 2017)
- Rahaman, M. N. 1995. *Ceramic Processing and Sintering*. Marcel Dekker.
- RAGA, B. C. D. S. 2016. *Pengaruh pH terhadap Karakteristik Silika Xerogel Berbasis Abu Bagase*. Skripsi S-1 Jurusan Kimia. Universitas Negeri Malang, Malang.
- SCHUBERT, U & N. HÜSING. 2000. *Synthesis of Inorganic Materials*. Wiley-VCH, Weinheim.
- ZULFLIKAR, M.A., A.W. MOHAMMAD., A.A. KADHUM & N. HILAL. 2006. Poly(methyl methacrylate)/SiO₂ Hybrid Membranes: Effect of Solvents on Structural and Thermal Properties. *Journal of Applied Polymer Science*. 99: 3163-3171.