

Analisa Pengaruh Variasi *Leaching* dan Penambahan Template Terhadap Pembentukan *Hollow* Mesoporous Silika Nanopartikel

Ni Komang Alit Juliani, Hariyati Purwaningsih, Diah Susanti, dan Vania Mitha Pratiwi

Departemen Teknik Material dan Metalurgi, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

e-mail: hariyati@mat-eng.its.ac.id

Abstrak—Penelitian ini bertujuan untuk menganalisa pengaruh efektifitas *leaching* dalam menghasilkan silika, dan menganalisa pengaruh penambahan senyawa template OA (Octyl Amine) pada pembentukan mesopori silika nanopartikel. Penelitian ini menggunakan bahan dasar sekam padi yang di *leaching* menggunakan asam kuat yaitu HNO₃, HCl, dan H₂SO₄. Berdasarkan hasil pengujian EDX kadar silika yang paling tinggi dihasilkan pada *leaching* menggunakan HNO₃ sebesar 39.21 (wt%). Gugus fungsi hasil FTIR menjelaskan adanya gugus siloksan. Hasil XRD menunjukkan bahwa silika mesopori silika nanopartikel hasil proses ekstraksi mempunyai fasa amorfus. Hasil SEM pada mesopori silika nanopartikel memiliki bentuk partikel yang lebih kecil dan penyebarannya merata. Dari hasil TEM didapatkan ukuran partikel pada mesopori silika nanopartikel berkisar antara 16-80nm. Mesopori silika nanopartikel memiliki diameter pori rata-rata sebesar 12.6 nm. Penggunaan OA berhasil untuk menyeragamkan ukuran partikel.

Kata Kunci—sekam padi, *leaching*, sol-gel, OA (Octyl Amine), silika mesopori.

I. PENDAHULUAN

BEBERAPA ratus tahun yang lalu para ilmuwan tertarik untuk meneliti pembuatan nanomaterial berpori. Penelitian yang dilakukan baik dalam hal bentuk, komposisi, dan struktur nanomaterial, serta sifat atau karakteristiknya. Aplikasi potensial dari nanomaterial di berbagai bidang dalam kehidupan sehari-hari, meliputi optik, elektronik, perangkat, sensor, katalis, dan obat-obatan [1]. Salah satu nanomaterial berpori adalah material mesopori yang memiliki ukuran diameter pori 2-50nm. Material mesopori seperti SiO₂, TiO₂, ZnO₂, dan Fe₂O₃ [2]. Aplikasi yang umum digunakan dari material mesopori diantaranya sebagai katalis, bio-medis, material sensor, perangkat elektro-optik, dan teknologi elektronik [3].

Material mesopori dapat dibagi menjadi dua kategori, yakni famili material M41S dan material zeolit berpilar. Kedua material ini menunjukkan keragaman struktural dan komposisi yang luas dengan relatif mudahnya persiapan dalam hal proses pembuatan atau fabrikasinya, sehingga memberikan peluang baru untuk aplikasi sebagai katalis, penyerapan dan dukungan media yang digunakan [4].

Famili M41S memiliki keunikan karakteristik yang berbeda-beda, misalnya saja MCM-41 memiliki susunan yang

heksagonal dari porus 1-dimensional, MCM-48 menunjukkan struktur kubik, dan MCM-50 memiliki susunan lamellar [5].

Untuk mensintesis mesopori silika dapat dilakukan dengan beberapa metode diantaranya liquid-phase, sol-gel, ko-kondensasi, pertukaran ion, induksi listrik microwave [6]. Namun, metode yang umum digunakan adalah metode sol-gel. Surfaktan berfungsi sebagai pembentuk misel di dalam proses pembentukan mesoporus silika. [7] melakukan sebuah penelitian tentang bola berongga yang memiliki aplikasi potensial di bidang teknik karena morfologi dan struktur khusus mereka. Pori-pori di cangkang berongga bisa menjadi jalan bagi zat tamu masuk ke dalam atau keluar dari cekungan, memungkinkan bola berongga diterapkan di bidang adsorpsi, pemisahan, katalisis, reaktor mikro, kapsul, dll. Hal ini juga menunjukkan bahwa bola berongga memiliki sifat mekanik, akustik, optik, elektromagnetik dan termal yang unik, membuat bola berongga menarik sebagai bahan fungsional baru yang maju. Dalam pembuatan bola silika berongga menggunakan TEOS dan template octylamine (OA). Pada penelitian kali ini, untuk mensintesis silika nanopartikel menggunakan metode sol-gel. Bahan utama yang digunakan pada penelitian ini berasal dari sekam padi yang akan diekstraksi untuk mendapatkan serbuk silika dan dilanjutkan dengan proses pembuatan silika hollow mesopori nanopartikel dengan penambahan OA (Octyl Amine).

II. METODE PENELITIAN

A. Proses Ekstraksi Silika

Ekstraksi silika (SiO₂) dilakukan dengan cara *meleaching* sekam padi dengan HNO₃ 2M, HCl 2M, dan H₂SO₄ 2M sebanyak 100 mL sambil dipanaskan dengan temperatur 90°C selama 2 jam. Kemudian dicuci hingga mencapai pH 7 dan dibakar dalam *muffle furnace* 600°C selama 4 jam. Hasil pembakaran tersebut, abu sekam padi, sebanyak 4 gram direaksikan dengan NaOH 2M sebanyak 67 ml dengan *stirring* 90°C selama 2 jam. Setelah itu dibiarkan mendingin dan disaring ampasnya menggunakan kertas saring. Larutan hasil saringan dititrasi dengan larutan H₃PO₄ 2M sedikit demi sedikit hingga pH mencapai 9. Setelah itu, dibiarkan 8 jam untuk proses *aging*.

Proses *aging* selesai, dimasukkan dalam mesin *centrifuge* dengan kecepatan putar sebesar 3000 rpm selama 8 menit, kemudian dilanjutkan dengan mencuci endapan yang terbentuk dengan akuades. Endapan tersebut dicuci minimal 4 kali hingga mencapai pH=7. Endapan tersebut kemudian

dilakukan pengeringan (*drying*) dengan temperatur 100°C selama 2 jam. Hasil dari proses pengeringan tersebut diambil sampel kemudian dilakukan pengujian.

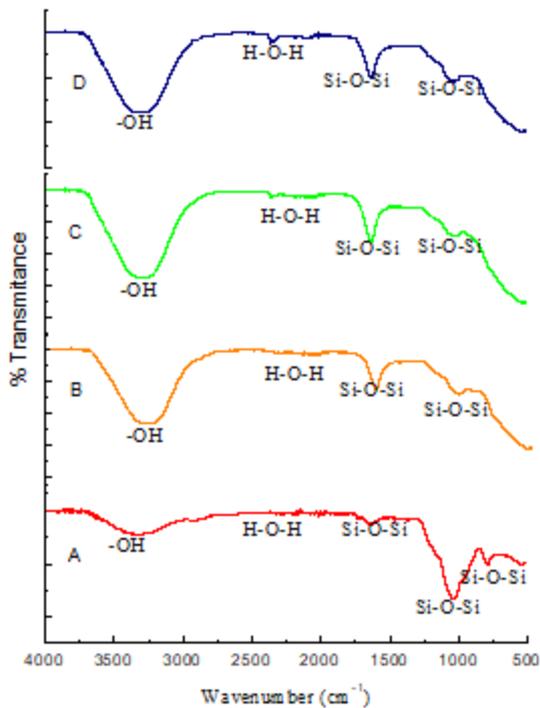
B. Proses Pembuatan Hollow Silika Nanopartikel Mesopori

Dalam tahap ini, bahan-bahan yang digunakan adalah silika hasil ekstraksi dari sekam padi (SiO_2), Natrium hidroksida (NaOH), Asam klorida (HCl), dan OA (*Octyl Amine*). 2 gram SiO_2 dilarutkan dengan 2,64 gram NaOH 2M 33 mL diikuti dengan pengadukan selama 30 menit. Kemudian, larutan Na_2SiO_3 ditambahkan larutan Octyl Amine dengan cara meneteskan sedikit demi sedikit diikuti dengan pengadukan selama 1 jam. Setelah dilakukan pengadukan, menambahkan HCl 3M ke dalam campuran larutan hingga mencapai $\text{pH}=10,2$ diikuti dengan pengadukan selama 5 menit. Kemudian, si filtrasi dan di cuci menggunakan akuades.

Setelah melakukan proses di atas, kemudian, endapan yang terbentuk dipisahkan dengan *Buchner funnel* dan endapan tersebut dicuci dengan akuades, serta dilakukan proses kalsinasi dengan temperature 550° C selama 6 jam.

III. HASIL DAN DISKUSI

A. Hasil Pengujian FTIR

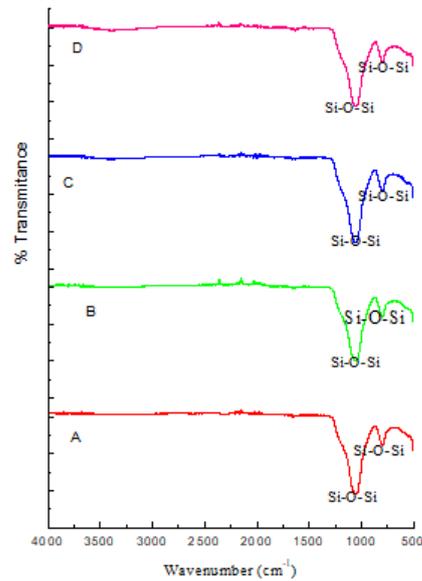


Gambar 1. Spektra FTIR dari sampel (A) sekam padi tanpa *leaching*, dan sekam padi setelah di *leaching* menggunakan (B) HNO_3 , (C) HCl , (D) H_2SO_4

Gambar 1 menunjukkan spectra FTIR untuk masing-masing sampel. Proses *leaching* pada sekam padi menggunakan asam kuat yaitu HNO_3 , HCl , dan H_2SO_4 . Berdasarkan spectra FTIR dapat dilihat *leaching* efektif dilakukan untuk meningkatkan kadar Si-O-Si (siloksan) pada sekam padi. Terlihat pada sampel sekam padi tanpa *leaching* salah satunya dengan gugus fungsi Si-O-Si pada rentang bilangan gelombang 1634.33 cm^{-1} saat dilakukan *leaching*

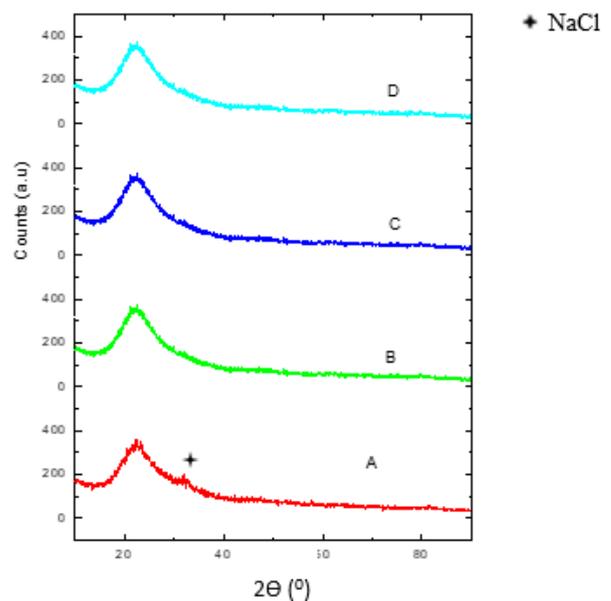
menggunakan HNO_3 , HCl , dan H_2SO_4 gugus fungsi Si-O-Si meningkat pada rentang bilangan gelombang 1635.58 cm^{-1} - 1636.76 cm^{-1} .

Gambar 2. spectra FTIR dari sampel abu sekam padi hasil dari pembakaran dengan temperatur 600°C. Terlihat bahwa pada sampel (A), (B), (C), dan (D) sama-sama memiliki puncak tertinggi dengan bilangan gelombang sekitar 1054 cm^{-1} yang merupakan gugus fungsi dari Si-O-Si (siloksan). Dimana gugus fungsi ini merupakan pita vibrasi ulur asimetri Si-O pada ikatan Si-O-Si. Gambar 2 membuktikan bahwa pada proses pembakaran gugus fungsi -OH dan H-O-H menguap, maka dari itu pengaruh *leaching* pada sekam padi ini sudah tidak terlihat lagi setelah menjadi abu sekam padi.



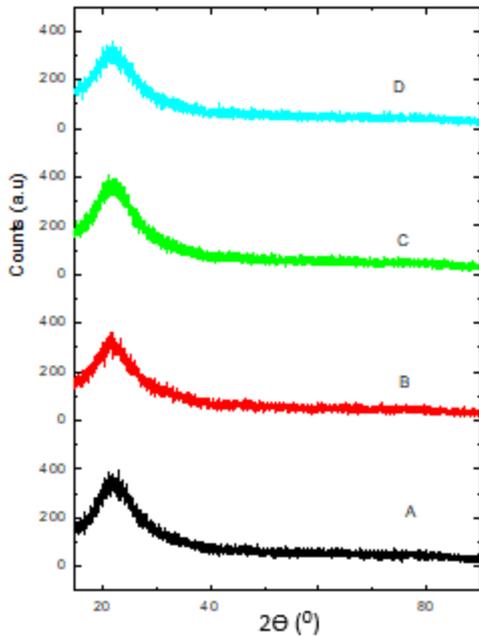
Gambar 2. Spektra FTIR dari sampel (A) abu sekam padi tanpa *leaching*, dan setelah di *leaching* menggunakan (B) HNO_3 , (C) HCl , (D) H_2SO_4

B. Hasil Pengujian XRD



Gambar 3. Difraktogram XRD dari sampel (A) silika hasil ekstraksi sekam padi tanpa proses *leaching*, dan silika hasil ekstraksi sekam padi dengan proses *leaching* (B) HNO_3 , (C) HCl , dan (D) H_2SO_4

Gambar 3 menunjukkan difraktogram XRD dari beberapa sampel. Gambar 3 (A), memiliki merupakan silika hasil dari ekstraksi sekam padi tanpa *leaching*, yang mempunyai tinggi peak sekitar 400[cps] dan nilai 2θ sebesar 22.3601°. Pada sampel ini terlihat masih terdapat pengotor NaCl yang berasal dari proses pembuatan silika dari abu sekam padi. Peak NaCl telah dicocokkan berdasarkan PDF card ICCD #00-005-0628. Silika hasil ekstraksi sekam padi menggunakan proses *leaching* dengan HNO₃, HCl, dan H₂SO₄ ditunjukkan pada Gambar 3 (B), (C), dan (D), mempunyai tinggi peak sebesar 400[cps] dan nilai 2θ sekitar 22°.



Gambar 4. Difraktogram setelah penambahan OA (*Octyl Amine*) pada silika (A) tanpa proses *leaching*, (B) *leaching* dengan HNO₃, (C) *leaching* menggunakan HCl, dan (D) *leaching* menggunakan H₂SO₄

Gambar 4. menunjukkan difraktogram dari sampel OA (*Octyl Amine*) dengan variasi *leaching* saat proses ekstraksi sekam padi. Gambar 4. (A), (B), (C), dan (D) sama-sama memiliki struktur Kristal amorfus yang memiliki nilai 2θ sekitar 210 dan tinggi peak sebesar 400[cps]. Pada sampel penambahan OA ini memiliki struktur kristal amorfus yang seragam, karena tujuan penambahan OA ini untuk menyeragamkan ukuran pori. Sedangkan pada Tabel 4.2 menunjukkan ukuran Kristal dari silika berdasarkan hukum Bragg Scherrer.

Tabel 1. Ukuran Kristal penambahan OA (*Octyl Amine*)

Sampel	Pos. [°2θ]	FWHM [°2θ]	K	λ (Å)	B (rad)	COSθ	d (Å)	d (nm)
OA NoL	21.5908	0.9792	0.90	1.5406	1.53	0.982	0.920	0.092
OA HNO ₃	21.6743	0.090	0.90	1.5406	0.1409	0.982	10.016	1.0016
OA HCl	21.2853	0.090	0.90	1.5406	0.314	0.983	4.489	0.4489
OA H ₂ SO ₄	21.4234	0.090	0.90	1.5406	1.533	0.982	0.920	0.0926

C. Hasil Pengujian EDX

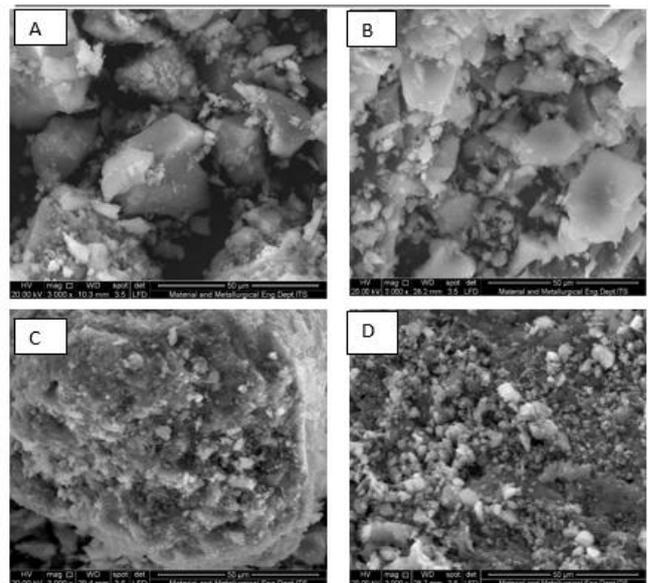
Proses *leaching* menggunakan HNO₃, HCl, dan H₂SO₄ pada sekam padi dapat meningkatkan kadar Silika. Berdasarkan perhitungan yield silika pada sekam padi

menghasilkan kadar silika pada sekam padi dengan *leaching* menggunakan HNO₃ sebesar 83.3%, sedangkan menggunakan HCl sebesar 74.19%, dan menggunakan H₂SO₄ sebesar 66.81%. Maka dapat disimpulkan asam kuat yang cocok digunakan pada sekam padi untuk meningkatkan kadar silika yaitu HNO₃ berdasarkan perhitungan yield yang di dapatkan dalam data uji EDX sekam padi pada Tabel 2.

Tabel 2. Komposisi unsur hasil pengujian EDX sekam padi dengan variasi *leaching*

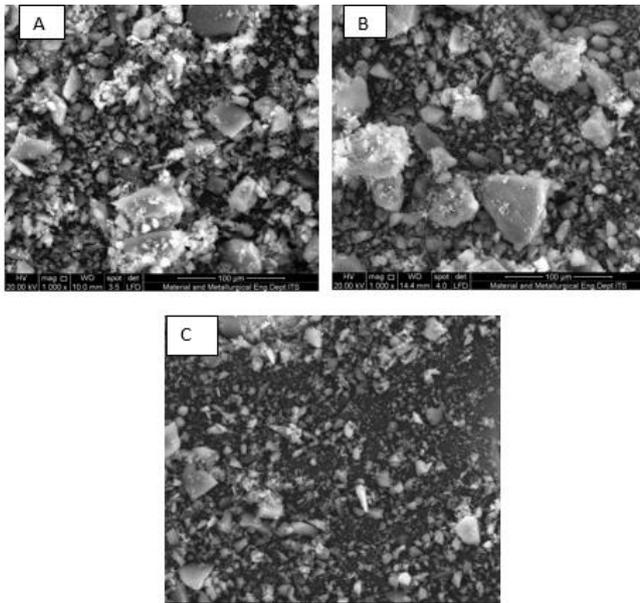
Element	Sekam No Leaching (wt%)	Sekam Leaching HNO ₃ (wt%)	Sekam Leaching HCl (wt%)	Sekam Leaching H ₂ SO ₄ (wt%)
C	28.79	15.61	17.49	15.94
O	46.88	41.68	42.38	44.02
Na	0.37	0.19	0.32	0.53
Mg	0.48	0.17	0.23	0.19
Si	21.39	39.21	37.26	35.68
S	0.22	0.95	0.63	0.4
K	0.62	0.27	0.35	0.58
Ca	0.31	0.25	0.2	0.9
Ti	0.35	0.12	0.27	0.44
Fe	0.6	1.55	0.86	1.31

D. Hasil Pengujian Mikroskop Elektronik



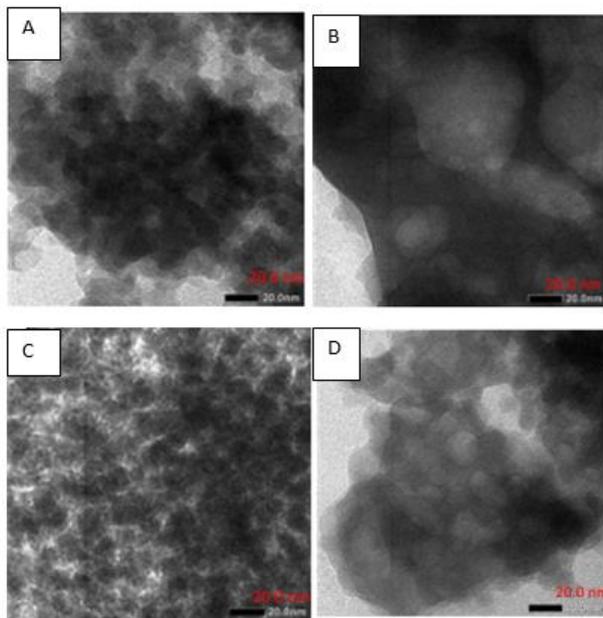
Gambar 5. Mikrografi hasil uji SEM dari sampel silika dengan pembesaran 3000x (A) silika tanpa proses *leaching*, (B) silika dengan *leaching* HNO₃, (C) silika dengan *leaching* HCl, dan (D) silika dengan *leaching* H₂SO₄

Gambar 5. menunjukkan mikrografi hasil uji SEM dari silika. Terlihat bahwa permukaan partikel dari silika tidak merata dan mempunyai ukuran yang besar dan mempunyai gumpalan (aglomerat), dan pada penelitian ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan yang menyatakan morfologi silika yang berbentuk bulat [8].



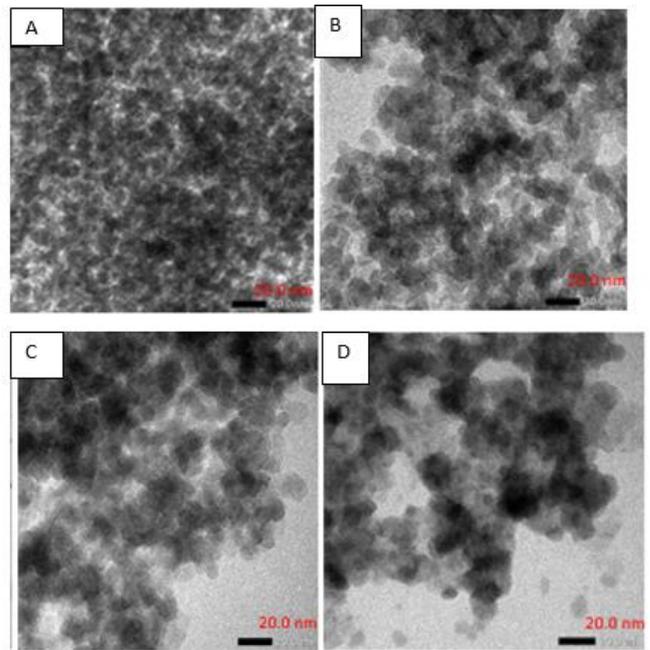
Gambar 6. Mikrografi hasil uji SEM dengan pembesaran 1000x dari penambahan OA (*Octyl Amine*) pada silika (A) *leaching* dengan HNO₃, (B) *leaching* menggunakan HCl, dan (C) *leaching* menggunakan H₂SO₄

Dari Gambar 6. terlihat dengan jelas bahwa permukaan sampel cukup merata dan hanya terdapat sedikit gumpalan (aglomerat), yang mengindikasikan adanya ukuran butir yang cukup beragam. Hal ini menunjukkan penambahan OA (*Octyl Amine*) dapat mempengaruhi ukuran pori pada SiO₂.



Gambar 7. Mikrografi TEM Silika pembesaran 80000x (A) Silika tanpa proses *leaching*, (B) Silika dengan *leaching* HNO₃, (C) Silika dengan *leaching* HCl, dan (D) Silika dengan *leaching* H₂SO₄

Secara umum partikel-partikel SiO₂ memiliki ukuran partikel sekitar 50nm pada sampel (A), 18nm pada sampel (B), 20nm pada sampel (C), dan 18.7nm pada sampel (D), ukuran partikel ini diperoleh berdasarkan pengukuran menggunakan ruler image. Partikel-partikel ini membentuk gumpalan yang tidak beraturan dan bulat sehingga ketika diberikan transmisi electron diberikan gambar yang dihasilkan menjadi gelap.



Gambar 8. Mikrografi TEM dari penambahan OA (*Octyl Amine*) dengan pembesaran 80000x (A) OA tanpa proses *leaching*, (B) OA dengan *leaching* HNO₃, (C) OA dengan *leaching* HCl, dan (D) OA dengan *leaching* H₂SO₄

Gambar 8. (A) menunjukkan mikrografi TEM dari silika tanpa *leaching* dengan penambahan OA (*Octyl Amine*) yang mempunyai bentuk partikel sedikit beraturan, terang, dan mempunyai ukuran rata-rata partikel 40 nm. Gambar 8. (B) menunjukkan mikrografi TEM dari silika *leaching* HNO₃ dengan penambahan OA (*Octyl Amine*) yang mempunyai bentuk partikel lebih beraturan, terang, pipih dan mempunyai ukuran rata-rata partikel 15.8 nm. Gambar 8. (C) menunjukkan mikrografi TEM dari silika *leaching* HCl dengan penambahan OA (*Octyl Amine*) yang mempunyai bentuk partikel lebih beraturan, terang, pipih dan mempunyai ukuran rata-rata partikel 18.3 nm. Gambar 8. (D) menunjukkan mikrografi TEM dari silika *leaching* H₂SO₄ dengan penambahan OA (*Octyl Amine*) yang mempunyai bentuk partikel lebih beraturan, terang, pipih dan mempunyai ukuran rata-rata partikel 16.7 nm.

Dari semua sampel maka dapat disimpulkan, silika dengan penambahan OA (*Octyl Amine*) mempunyai partikel yang beraturan, pipih, dan tidak menggumpal sehingga ketika diberikan transmisi electron diberikan gambar yang dihasilkan menjadi lebih terang dibanding gambar yang dihasilkan pada Gambar 7.

E. Hasil Pengujian BET Surface Analysis

Luas permukaan pada silika gel sebesar 163 m²/g [8]. Untuk penelitian ini di dapatkan data uji BET seperti Tabel 4.4. Dari data tersebut di peroleh untuk sampel SiO₂ dengan *leaching* HNO₃ dan H₂SO₄ sama-sama memiliki diameter pori sekitar 18.1 nm, sedangkan pada sampel SiO₂ tanpa *leaching* memiliki jari-jari pori sebesar 259.802Å dan pada SiO₂ dengan *leaching* HCl mempunyai jari-jari pori sebesar 15.404.

Berdasarkan hasil pengujian BET pada sampel penambahan OA (*Octyl Amine*) didapatkan data seperti Tabel 4.5. Pada sampel penambahan OA pada hasil *leaching* menggunakan HNO₃, HCl dan H₂SO₄ memiliki jari-jari pori sekitar 63Å,

sedangkan pada sampel penambahan OA pada hasil *leaching* menggunakan HNO_3 memiliki jari-jari sebesar 75Å.

Tabel 3.

Data ukuran surface area, volume pori, dan jari-jari pori dari sampel SiO_2

Sampel	Surface (m^2/g)	Volume Pori (cc/g)	Diameter Pori (nm)
SiO_2 tanpa <i>leaching</i>	247.647	2.972	51.3604
SiO_2 <i>leaching</i> HNO_3	210.462	1.463	18.1266
SiO_2 <i>leaching</i> HCl	1.594	1.690	3.0808
SiO_2 <i>leaching</i> H_2SO_4	64.051	0.618	18.1492

Tabel 4.

Data ukuran surface area, volume pori, dan jari-jari pori dari sampel OA (*Octyl Amine*)

Sampel	Surface (m^2/g)	Volume pori (cc/g)	Diameter pori (nm)
OA <i>leaching</i> HNO_3	305.494	1.451	15.04
OA <i>leaching</i> HCl	18.853	1.225	12.72
OA <i>leaching</i> H_2SO_4	148.066	0.799	12.62

IV. KESIMPULAN

1. Sintesa silika dari sekam padi menghasilkan material mesoporous silika nanopartikel. Pada proses sintesa, sekam padi di *leaching* menggunakan HNO_3 , HCl, dan H_2SO_4 dimana dalam proses *leaching* ini menghasilkan kadar silika yang berbeda beda berdasarkan perhitungan rata-rata kadar silika dalam sekam padi berdasarkan hasil uji EDX. Saat sekam padi di *leaching* menggunakan HNO_3 memiliki kadar silika sebesar 83.3%, sedangkan menggunakan HCl sebesar 74.19%, dan saat menggunakan H_2SO_4 sebesar 66.81%. Berdasarkan hasil rata-rata perhitungan kadar silika dalam sekam padi menunjukkan bahwa sekam padi dengan *leaching* menggunakan HNO_3 lebih efektif untuk meningkatkan kadar silika. Hasil dari sintesa silika menghasilkan fasa amorf dan memiliki ukuran partikel sebesar 18 nm-50 nm. Selain itu, karakteristik dari material silika tersebut menghasilkan ukuran distribusi partikel yang lebih homogen. Ukuran diameter pori yang dihasilkan

pun termasuk material mesopori yang memiliki ukuran diameter 2 nm-50 nm.

2. Penambahan template OA (*Octyl Amine*) pada silika hasil sintesa dari sekam padi berhasil dilakukan untuk menghasilkan mesoporous silika nanopartikel yang berbentuk lebih homogen dengan ukuran partikel sebesar 16 nm-40 nm. Hal ini menunjukkan bahwa material silika yang dihasilkan merupakan nanomaterial, akan tetapi belum berhasil membentuk hollow mesoporous silika nanopartikel. Karena pada proses etching yang kurang merata pada template sehingga rongga mengecil, yang menyebabkan pembentukan *hollow* mesoporousnya kurang nampak.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Program Dana Penelitian Jurusan tahun 2018.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] E. . Johansson, "Controlling the pore size and morphology of mesoporous silica," Linköping University, 2010.
- [2] Nandiyanto, "Design a highly ordered and uniform porous structure with multisized pores in film and particle forms using a template-driven self-assembly technique," *Acta Mater.*, pp. 282–289, 2008.
- [3] F. Kleitz, "Ordered mesoporous materials: template removal, frameworks, and morphology," Ruhr-Universität Bochum, Saverne, 2002.
- [4] Roth, "Characterization of mesoporous molecular sieves differences between M41S and pillared layered zeolites," *Stud. Surf. Sci. Catal.*, pp. 501–508, 2000.
- [5] M. P. Prawingwong, "Mesoporous silica synthesized from rha and its grafting with ph-responsive poly(acrylic acid)," Thammasat University, Thailand, 2011.
- [6] J. . Vartuli, "Development of A Formation Mechanism for M41S Materials," *Stud. Surf. Sci. Catal.*, vol. 84, pp. 53–60, 1994.
- [7] J. Armesto, L., Bahillo, A., Veijonen, K., Cabanillas, A., & Otero, "Combustion Behaviour of Rice Husk in a Bubbling Fluidised Bed. Biomass and Bioenergy," pp. 171 – 179, 2002.
- [8] A. Barrabino, "Synthesis of mesoporous silica particles with control of both pore diameter and particle size," 2011.