



JURNAL REKAYASA, TEKNOLOGI PROSES DAN SAINS KIMIA

Received: 10-01-2025

Accepted: 30-04-2025

Published: 11-06-2025

Proses Penghilangan Surfaktan dengan Metode Ekstraksi Pelarut Pada Sintesis Silika Mesopori MCM-41

Sry Wahyuni ^{a*}, Admi ^b, Trisno Afandi ^a, Ria Januarti ^a, Dinda Rizka Fadhilah ^a, Syukri ^{b*}^aPoliteknik Teknologi Kimia Industri, Jl. Medan Tenggara VII, Medan 20228, Indonesia^bJurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Andalas, Kampus Limau Manis, Padang, 25163, Indonesia

*Email: sry93wahyuni@gmail.com, syukri.darajat@yahoo.com

Abstract

Mesoporous silica has been synthesized by using sodium silicate as silica source and cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) as a molecular template agent. Mesoporous silica synthesized at pH 11 with a molar ratio of SiO₂ with CTAB was 1: 0.53 through hydrothermal method. In this study, the removal of the surfactant has been done through solvent extraction process. Characterization of the sample with X-Ray Diffraction (XRD) showed that the mesoporous silica has been synthesized by the emergence of a pattern that is typical for mesoporous material, spectra Fourier Transform Infra-Red (FTIR) still shows the presence of surfactant molecules on silica calcination. Results of Scanning Electron Microscopy (SEM) showed morphology of spherical-shaped surface with a uniform particle size distribution.

Kata Kunci: Silika Mesopori, surfaktan, *template*, ekstraksi pelarut

I. PENDAHULUAN

Material berpori menjadi kajian menarik dewasa ini dikarenakan aplikasinya yang luas. Material berpori telah digunakan sebagai ayakan molekular (*molecular sieves*), *support* katalis, penyerap molekul organik, penyimpan energi, *drug delivery*, biosensor, industri penyulingan, degradasi polimer dan fasa diam pada kromatografi [1]. Material ini difabrikasi untuk mendapatkan pori dalam ukuran meso dengan keteraturan pori yang tinggi. Dua karakter ini sangat penting dan diharapkan dalam sintesis material berpori. Aplikasi pori yang berukuran meso berperan pada proses katalitik, yakni memperbesar luas permukaan spesifik. Rekayasa ukuran pori *support* katalis juga diharapkan akan memberikan keseragaman ukuran pori sehingga dapat meningkatkan aktivitas dan selektifitas produk dari katalis yang digunakan.

Salah satu material berpori yang telah umum digunakan adalah silika (SiO₂). Dua tipe silika mesopori dengan pori seragam yang telah berhasil disintesis dan dikenal luas sebagai *support* adalah MCM (*mobil crystalline of material*), SBA (*santa barbara amorphous*) [2]. Masing-masing material mesopori ini memiliki struktur dan karakter mesopori yang berbeda. Beberapa parameter yang mempengaruhi pembentukan pori dan keteraturan pori adalah jenis sumber silika, jenis surfaktan, jenis ko-surfaktan, temperatur proses, waktu

pematangan, aditif, pelarut, metode penghilangan surfaktan dan komposisi rasio molar surfaktan dengan silikanya [3].

Berbagai metode teknik modifikasi silika telah digunakan namun semuanya tidak lepas dari penggunaan dua bahan penting, *molecular templating agent* dan *mineralizer*. *Molecular templating agent* berguna sebagai cetakan molekuler sehingga bisa diperoleh ukuran pori yang diinginkan sedangkan *mineralizer* berkaitan dengan kelarutan silika dalam sistem larutannya. Sampai saat ini, MCM-41 dan MCM-48 merupakan dua jenis material silika yang memiliki ukuran pori dan luas permukaan paling sesuai digunakan sebagai *support*. Senyawa silikat yang larut seperti tetraetil orto silikat (TEOS) dan natrium silikat (Na_2SiO_3) telah banyak digunakan sebagai sumber silika pada sintesis silika mesopori. Pada penelitian kali ini digunakan garam silikat (natrium silikat) sebagai sumber silika. Natrium silikat (Na_2SiO_3) dapat larut sehingga relatif efisien karena tidak membutuhkan *mineralizer*. Natrium silikat (Na_2SiO_3) dipilih sebagai sumber silika karena Na_2SiO_3 memiliki harga yang relatif murah dibandingkan dengan sumber silika lain yang biasa digunakan yaitu tetraetil orto silikat (TEOS). TEOS dapat dihidrolisis untuk mendapatkan grup silanol sedangkan larutan Na_2SiO_3 telah menyediakan gugus ini. Namun, kehadiran ion Na selama proses tidak dapat diabaikan, karena dapat mengganggu pembentukan kerangka dasar (*framework*) dari silika mesopori [4]. Pemilihan metode penghilangan surfaktan juga mempengaruhi struktur kristalinitas dan struktur pori dari silika mesopori. Karena kehadiran *template* yang merupakan senyawa organik pada silika mesopori dapat mempengaruhi sifat dan strukturnya, sehingga diharapkan pada proses ini semua senyawa organik dari *template* dapat dihilangkan dari silika mesopori yang dihasilkan. Pada penelitian ini dipelajari tentang metode penghilangan surfaktan dengan menggunakan ekstraksi pelarut pada sintesis silika mesopore [5].

II. METODE PENELITIAN

A. Bahan Kimia

Na_2SiO_3 (Merck) dengan perbandingan Na_2O dan SiO_2 25,5:7,5, CTAB (Merck $\geq 98\%$), asam asetat glasial (Merck 100%), HCl (Merck 37%), metanol (Merck $\geq 99\%$), kertas saring (Whatmann 1) dan akuades.

B. Peralatan

Peralatan gelas, *hotplate magnetic stirrer*, oven, *autoclave*, pH meter, timbangan analitis, *furnace*, FTIR (Perkin Elmer 1600 Series) SEM-EDX (S-3400 Hitachi), dan XRD (Philips X-pert powder diffractometer).

C. Sintesis Silika Mesopori

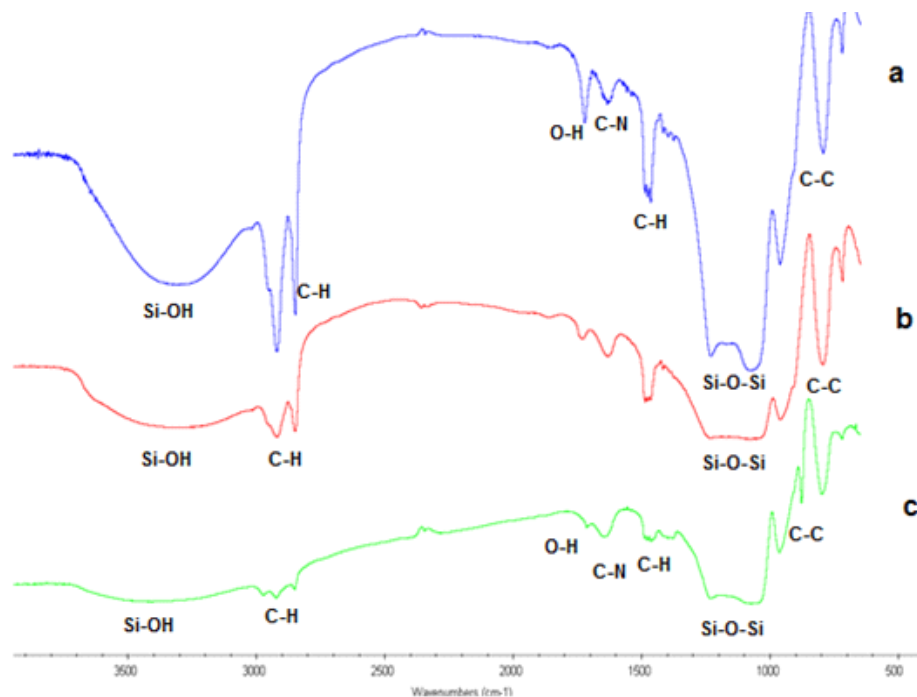
Bahan-bahan disiapkan dengan perbandingan mol Na_2SiO_3 :CTAB:akuades 1:0,53:120 [4]. Ke dalam gelas piala yang telah diisi dengan sejumlah akuades ditambahkan perlahan-lahan sejumlah CTAB dengan pengadukan yang lambat. CTAB dilarutkan sampai didapatkan larutan bening. Larutan bening ini adalah larutan *template*. Kedalam larutan *template* ditambahkan sejumlah natrium silikat (Na_2SiO_3) dengan rasio mol Na_2SiO_3 :CTAB:akuades 1:0,53:120. Larutan Natrium silikat (Na_2SiO_3) ditambahkan secara perlahan-lahan sampai terbentuk suspensi koloid berwarna putih, pH larutan dicek menggunakan pH-meter. pH larutan diatur menjadi 11 dengan penambahan asam asetat glasial (CH_3COOH) atau NaOH. Campuran ini dimasukkan ke dalam *autoclave* dan dioven pada temperatur 110 °C selama 72 jam. Padatan yang didapatkan disaring menggunakan kertas saring whattmann no 1, dan dikeringkan pada temperatur kamar selama 12 jam. Padatan dioven selama 12 jam pada temperatur 100 °C. Padatan yang diperoleh disebut produk as-sintesis. Padatan yang diperoleh direfluks menggunakan campuran pelarut metanol:HCl dengan

perbandingan volume metanol:HCl adalah 9:1 pada temperatur 70, 75 dan 80 °C selama 2 jam. Setelah itu larutan disaring, dicuci dengan metanol/air dikeringkan pada temperatur kamar dan dioven pada temperatur 100° C selama 12 jam untuk menghilangkan sisa air. Padatan yang diperoleh adalah silika mesopori yang selanjutnya akan dikarakterisasi dengan FTIR, XRD dan SEM-EDX.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

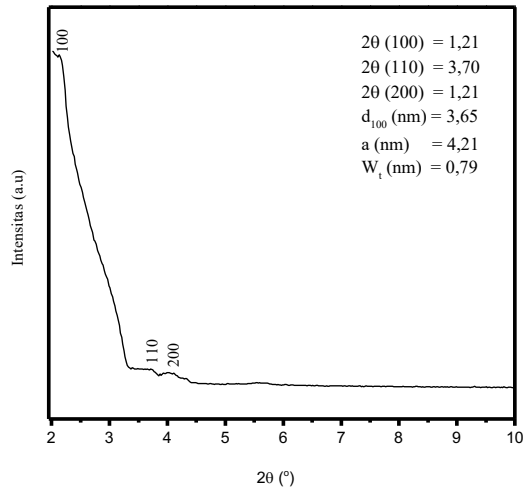
Hasil Silika mesopori disintesis dengan menggunakan metoda hidrotermal dengan menggunakan natrium silikat sebagai sumber silika dan cetiltrimetilammonium bromida (CTAB) sebagai *template* atau zat pengarah struktur mesopori dari silika dan akuades sebagai pelarut. Rasio mol Na_2SiO_3 :CTAB:akuades yang digunakan adalah 1:0,53:120. Perbandingan mol Na_2O dengan SiO_2 pada Na_2SiO_3 yang digunakan adalah 25,5:7,5 [4]. Rasio mol ini dilaporkan oleh Hector (2013) merupakan rasio mol optimum untuk sintesis silika mesopori dengan menggunakan Na_2SiO_3 dan CTAB. Perbandingan mol Na dengan SiO_2 dapat mempengaruhi struktur silika mesopori. Untuk itu dipilih larutan Na_2SiO_3 yang memiliki mol Na yang sedikit. Mol Na_2SiO_3 dilebihkan dari mol CTAB karena ion-ion silikat akan membentuk jaringan SiO_2 . Jika mol SiO_2 sedikit maka silika mesopori yang dihasilkan akan memiliki dinding pori yang tipis, sehingga akan mengurangi sifat mekanik dari silika mesopori tersebut. Silika mesopori pada penelitian ini disintesis dengan mekanisme S^+I^- adalah senyawaan silika yang bermuatan negatif (anion silikat) sedangkan S^+ adalah *template* yang bermuatan positif (surfaktan kationik). Pada umumnya sintesis material mesopori silika menggunakan mekanisme ini. Hal ini disebabkan karena silika akan lebih mudah didapatkan dalam bentuk ion negatif (anion) dibandingkan positif (kation). Muatan yang berbeda antara silikat dengan surfaktan kationik akan menghasilkan interaksi elektrostatis sehingga ion-ion silikat dapat terikat pada surfaktan kationik yang telah membentuk misel. Adanya anion silikat membuat pH dari larutan menjadi basa (9,5-12,5). Pada kondisi ini kondensasi dan polimerisasi akan terjadi [21]. Namun pH optimum pembentukan gel yang akan mengalami polimerisasi silika adalah pH 11, pada pH 11 suspensi campuran CTAB dengan Na_2SiO_3 membentuk gel. Asam asetat digunakan untuk mengatur pH karena sifat dari asam asetat yang merupakan asam lemah sehingga dengan penambahan asam asetat pH dari larutan tidak akan turun drastis. Dibawah pH 11 Na_2SiO_3 akan membentuk amorf silika gel dan membutuhkan waktu untuk menurunkan derajat gel tersebut [6].

Analisa FTIR dilakukan untuk menentukan keberhasilan penghilangan molekul *template* (surfaktan) pada silika mesopori yang dihasilkan. Analisa dilakukan dengan membandingkan pita spektrum produk as-sintesis dengan silika mesopori yang sudah dilakukan proses penghilangan surfaktan. Dari spektrum yang didapatkan pada gambar 1. terlihat masih terdapat senyawa-senyawa organik yang berasal dari surfaktan yang digunakan. Untuk produk as-sintesis muncul banyak pita serapan dibandingkan silika yang telah dihilangkan surfaktannya, hal ini memperlihatkan bahwa di dalamnya terdapat senyawa organik. Pada daerah 3017 cm^{-1} , 2849 cm^{-1} , 1560 cm^{-1} , 1487 cm^{-1} , 1463 cm^{-1} , 1408 cm^{-1} , 911 cm^{-1} , dan 730 cm^{-1} merupakan pita serapan masing-masing dari vibrasi *stretching* C-H untuk CH_3 simetris, *stretching* C-H pada CH_2 simetris, *stretching* C-N, *bending* C-H pada CH_3 asimetris, CH_2 *scissoring*, *bending* C-H pada CH_3 simetris, *stretching* C-C, dan CH_2 *rocking* [7]



Gambar 1. Analisis FTIR (a) Silika yang diekstraksi pada suhu 70 °C (b) silika yang diekstraksi suhu 75 °C (c) silika yang diekstraksi suhu 80 °C

Gugus-gugus tersebut merupakan gugus yang berasal dari surfaktan yang digunakan yakni CTAB yang akan dihilangkan dengan metoda kalsinasi dan ekstraksi pelarut, sehingga pada produk silika mesopori diharapkan gugus-gugus tersebut hilang. Daerah pita serapan untuk *stretching* Si-OH atau gugus silanol muncul pada daerah 3438 cm^{-1} , *stretching* O-H yang berasal dari molekul H-O-H yang terserap pada permukaan silika nampak muncul pada daerah 1640 cm^{-1} , daerah $1230\text{--}1065\text{ cm}^{-1}$ merupakan daerah pita serapan untuk siloksan (Si-O-Si) asimetris. Pada daerah 960 cm^{-1} merupakan pita serapan *bending* Si-OH dan daerah 796 cm^{-1} merupakan daerah *stretching* Si-O-Si simetris. Pita serapan yang muncul pada angka gelombang $2359,10$ merupakan *stretching* C=O dari molekul CO_2 yang terserap pada permukaan material. Proses penghilangan surfaktan dengan metoda ekstraksi pelarut dilakukan dengan merefluks produk as-sintesis pada pelarut metanol dan HCl dengan perbandingan volume metanol:HCl 9:1 [8]. Pada penelitian ini digunakan volume 27:3. Metanol dikenal sebagai pelarut organik sehingga senyawa organik yang ada pada produk as-sintesis dengan pemanasan berulang (refluks) diharapkan dapat larut. HCl yang bersifat destruktif dapat memutus ikatan antara silikat dengan senyawa organik. Karena ikatan yang terjadi antara silika dengan CTAB merupakan ikatan lemah sehingga mudah diputus dengan penambahan asam kuat. Pada gambar 1 dapat dilihat masih terdapat molekul organik pada silika mesopore [9]. Nilai intensitas puncak-puncak untuk senyawa organik menurun dengan semakin tinggi temperatur yang digunakan pada proses ekstraksi. Pada temperatur 70 °C proses pemanasan belum sempurna sehingga senyawa organik tidak terlepas sempurna dari senyawa anorganik (struktur kerangka silika yang telah terbentuk). Pada temperatur 75° C intensitas senyawa organik (ditunjukkan pada angka gelombang $2800\text{--}3000\text{ cm}^{-1}$ menurun dan pada suhu 80° C semakin menurun lagi. Selain intensitas pita serapan untuk molekul organik yang menurun, intensitas pita serapan untuk OH juga menurun.



Gambar 2. Difraktogram silika ekstraksi 80 °C

Pola difraksi XRD untuk silika mesopori sudah dilaporkan pada banyak literatur yang mempelajari tentang pembuatan silika mesopori. Material yang dikarakterisasi dengan XRD dapat ditentukan dengan melihat kesesuaian hasil difraktogram dengan standar material yang akan diukur, baik dari posisi puncak yang muncul pada 2θ , maupun pola puncak difraktogram yang dihasilkannya. Untuk material mesopori biasanya dengan mencocokkan pola difraktogram pengukuran dengan pola standar yang dihasilkan dari penelitian terdahulu. Puncak untuk material mesopori akan muncul pada nilai 2θ yang rendah yaitu 1° - 6° . Gambar 2 memperlihatkan bentuk difraktogram dari silika mesopori yang telah disintesis, pada difraktogram tampak bahwa silika mesopori yang dihasilkan memiliki struktur semikristalin dengan munculnya puncak yang tidak terlalu tajam. Puncak ini mengindikasikan adanya keteraturan dari struktur silika yang dihasilkan. Keteraturan yang dimaksud adalah pori-pori satu arah yang berukuran seragam. Pada difraktogram silika mesopori ekstraksi pelarut terlihat tiga puncak khas silika mesopori yang merupakan bidang 100, 110, dan 200 yang berada pada sudut masing-masing $1,21^{\circ}$, $3,70^{\circ}$ dan $4,03^{\circ}$ dari 2θ . *Shoulder* yang muncul pada puncak bidang 100 juga merupakan salah satu karakter dari silika mesopori [10]. Adanya senyawa organik yang dihasilkan dari penggunaan *template* CTAB pada silika mesopori ekstraksi dapat menutup permukaan dari pori sehingga ukuran pori menjadi kecil. Ukuran diameter pori dapat ditentukan dengan metoda BJH dengan pengukuran adsorpsi-desorpsi gas nitrogen. Dengan mengaplikasikan hukum Bragg dapat ditentukan d_{100} atau jarak interplanar (nm) dari semikristalin silika mesopori, sehingga dapat ditentukan unit sel (a) dari silika mesopori [11]. Hukum Bragg :

$$d_{100} = \frac{\lambda}{2 \sin \Theta}$$

d_{100} merupakan jarak interplanar (nm), λ adalah panjang gelombang Cu K α (0,154056 nm), dan Θ adalah posisi sudut dari puncak pertama yang muncul.

Untuk bentuk pori yang diasumsikan heksagonal, unit sel dapat ditentukan dengan persamaan:

$$a = \frac{2d_{100}}{\sqrt{3}}$$

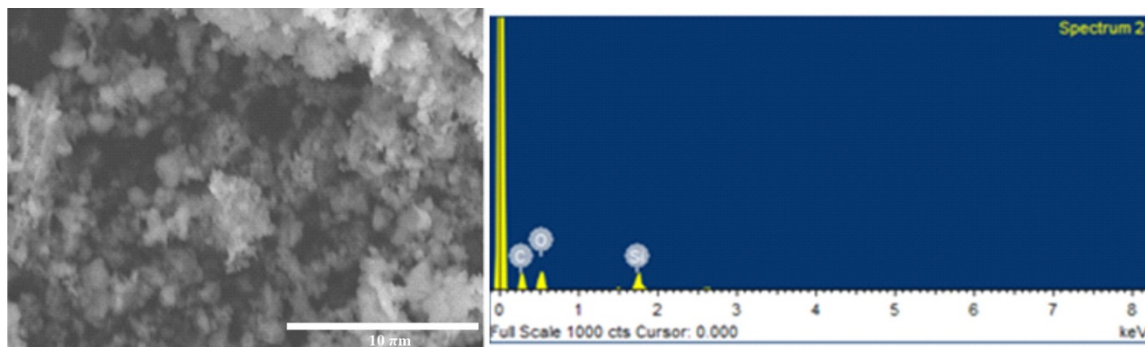
Jika unit sel dan ukuran pori diketahui maka dapat dihitung ketebalan dinding pori (W_t) dari silika mesopori dengan persamaan [3]:

$$W_t = a - \text{ukuran pori rata-rata}$$

Tabel 2. Analisis XRD dari silika mesopori kalsinasi dan ekstraksi

No	Metoda	2θ (100)	2θ (110)	2θ (200)	d_{100} (nm)	a (nm)	W_t (nm)
1.	Ekstraksi	1,21	3,70	4,03	3,65	4,21	0,79
2.	Kalsinasi	1,23	3,71	4,09	3,59	4.14	0,72

Pada penelitian sebelumnya telah dilakukan sintesis dan analisis xrd dari silika kalsinasi yang disipakn dengan metode kalsinasi dan terlihat perbedaan karakteristik dari silika mesopore yang didapatkan. Tebalnya dinding pori dari silika mesopori ekstraksi pelarut disebabkan karena surfaktan yang masih ada pada silika mesopori tersebut sehingga molekul-molekul surfaktan tersebut masih terikat dengan molekul silikat. Jika dibandingkan dengan difraktogram silika mesopori yang disintesis menggunakan prekursor TEOS dan *fumed silica*, silika mesopori yang disintesis menggunakan natrium silikat memiliki kristalinitas yang relatif rendah, karena adanya adanya ion Na yang dihasilkan dari natrium silikat yang dapat mengganggu struktur kerangka dari silika mesopori [12].



Gambar 3. Gambar SEM silika ekstraksi 80 °C

Karakterisasi silika mesopori menggunakan SEM untuk memperlihatkan struktur dan morfologi permukaan dari silika mesopori. Pengukuran SEM dilakukan pada pembesaran 5000 kali. Dari hasil SEM yang terlihat bentuk partikel dari silika mesopori berbentuk sperik dengan ukuran yang relatif seragam. SEM-EDX digunakan untuk menganalisa elemen yang ada material, pada penelitian ini digunakan untuk melihat apakah masih terdapat atom Na yang ada pada silika mesopori yang dihasilkan.

Tabel 2. Persen berat dan atom penyusun silika mesopori ekstraksi pelarut

NO	Elemen	% berat	% atom
1	Karbon (C)	37,43	48,12
2	Silikon (Si)	42,07	40,61
3	Oksigen (O)	20,50	11,27

Dari hasil pengukuran tampak tidak muncul puncak untuk atom Na sehingga dapat disimpulkan bahwa silika mesopori yang dihasilkan tidak mengandung atom Na dan hanya terdapat atom karbon (C), Silikon (Si) dan Oksigen (O). Selain itu dapat mengukur persentase komposisi dari masing-masing elemen pada silika mesopori yang dihasilkan Atom Na berasal dari larutan natrium silikat yang digunakan sebagai prekursor silika. Kehadiran dari atom Na pada silika mesopori dapat mengganggu kerangka silika mesopori yang dihasilkan [13].

IV. SIMPULAN

Silika mesopori telah berhasil disintesis dengan menggunakan metode ekstraksi pelarut dalam penghilangan surfaktannya. Karakteristik dari puncak difraktogram khas silika mesopori muncul melalui analisis dengan menggunakan XRD sudut kecil dibawah 2θ yakni sekitar $1-5^\circ$ yang mengindikasikan bidang 100, 110 dan 200. Dari hasil perhitungan diperoleh data bahwa ukuran pori rata-rata dari silika mesopori yang diperoleh adalah 4,21 nm dengan ketebalan dinding sekitar 0,79 nm. Dimana nilai ini masuk ke dalam range untuk material berpori. Gambar SEM memperlihatkan bahwa silika mesopore yang terbentuk memiliki keseragaman yang cukup tinggi dengan bentuk partikel sperik.

DAFTAR PUSTAKA

1. P. Renuka Devi and K.G.Dhanalakshmi. Applications of mesoporous silica nanomaterial. *International Journal of Advanced Life Sciences (IJALS)*. 2012. Volume 4.
2. Qianru Chen, Yusushiro Sakamoto, Osamu Terasaki, Shunai Che. Synthesis of silica mesoporous crystals with controlled structure and morphology using gemini surfactant. *Microporous and Mesoporous Materials*. 2007. 24-33. 105
3. Ortiz, H.I.M., Silva, AM., Cerda, L.A.G., Castruita, G., and Mercado, Y.A.P., Hydrothermal synthesis of mesoporous silica MCM-41 using commercial sodium silicate. *J. Mex. Chem. Soc.* 2012. 57(2), 73-79.
4. Fernandez, B., **2012**, Penggunaan Komplek Logam Transisi sebagai Katalis Heterogen dalam Berbagai Macam Reaksi Kimia, *Tesis*, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Padang.
5. Syukri, S., Fischer, C. E., Hmaideen A. A., Li, Y., Zheng, Y., and Kuhn, F. E., **2008**, Modified MCM-41-Supported Acetonitrile Ligated Copper(II) and its Catalytic Activity in Cyclopropanation of Olefins, *Microporous and Mesoporous Materials*, 113, 171-177. Pratikha, R. S., Syukri, S., Jamarun, N., Emdeniz, E., Efdi, M., dan Admi, A., **2013**, *Studi Komparasi Enkapsulasi Co(II)-Asetonitril pada Silika (Amorphous dan Semikristalin)*, Padang.
6. Munawan, A., Syukri, S., Emdeniz, E., dan Efdi, Mai., **2014**, Uji Pendahuluan Aktivitas Katalitik Katalis Mangan (II) yang Diamobilisasi pada Silika Modifikasi dalam Reaksi Transesterifikasi, *Jurnal Kimia Unand*, 3, 6-11.
7. Santen, R. A., Mouljin, J. A., Van, L. W. N., and Averill, B., **2009**, *Catalysis : An Integrated Approach*, Elsevier Science and Technology Books 2nd
8. Putra, A. E., Syukri, S. dan Admi, A., **2012**, *Sintesis, Karakterisasi dan Uji Aktifitas Katalitik Hibrid SiO₂-Mn-Co*, Padang.
9. Septia, R., Syukri, S., dan Emdeniz, E. **2014**, Penentuan Kondisi Optimum Aktivitas Katalitik Fe(II) yang Diamobilisasi pada Silika Modifikasi. *Jurnal Kimia Unand*, 3, 6-13.
10. Munawan, A., Syukri, S., Emdeniz, E., dan Efdi, Mai., **2014**, Uji Pendahuluan Aktivitas Katalitik Katalis Mangan (II) yang Diamobilisasi pada Silika Modifikasi dalam Reaksi Transesterifikasi, *Jurnal Kimia Unand*, 3, 6-11.
11. Santen, R. A., Mouljin, J. A., Van, L. W. N., and Averill, B., **2009**, *Catalysis : An Integrated Approach*, Elsevier Science and Technology Books 2nd
12. Putra, A. E., Syukri, S. dan Admi, A., **2012**, *Sintesis, Karakterisasi dan Uji Aktifitas Katalitik Hibrid SiO₂-Mn-Co*, Padang.

13. Anasta, Y. S., Admi, A., **2014**, Sintesis dan Karakterisasi Katalis Nikel(II) yang diamobilisasi pada Silika Modifikasi dan Uji Pendahuluan Aktivitas Katalitiknya dalam Reaksi Transesterifikasi Minyak Nabati, *Jurnal Kimia Unand* 2014, 3, 1-5.