

PENGARUH VARIASI AGING TERHADAP POROSITAS NANOSILIKA SEBAGAI ADSORBEN GAS NITROGEN

EFFECT OF AGING VARIATION ON NANOSILICA POROSITY AS NITROGEN GAS ADSORBENT

Abdulloh Ubaid* dan Munasir

Department of Physics, Faculty of Mathematics and Natural sciences

State University of Surabaya

Jl. Ketintang Surabaya (60231), Telp. 031-8298761

*Corresponding author, email: abdullohubaid19@gmail.com

Abstrak.

Tingkat pencemaran udara berbanding lurus dengan pertambahan sumber penghasil limbah. Adapun senyawa yang dihasilkan penghasil limbah adalah oksida karbon, oksida sulfur, dan oksida nitrogen. Salah satu cara mengurangi dampak pencemaran udara adalah dengan menggunakan adsorben seperti silika. Silika yang memiliki sifat *reversible* digunakan untuk mengadsorpsi unsur pencemar. Dalam adsorpsi, porositas silika dimanfaatkan sebagai tempat adsorbat. Silika dapat disintesis dari berbagai bahan, seperti Lusi, dan dengan beberapa macam metode, seperti *hydrothermal*. Dalam penelitian ini silika disintesis dengan tujuan untuk mengetahui pengaruh *Aging* terhadap porositas silika serta kualitas adsorben silika yang dihasilkan. Variasi *Aging* yang digunakan adalah 20, 24, 28 dan 32 jam. Hasil penelitian menunjukkan bahwa adsorben silika yang dihasilkan memiliki kemurnian 98,9% dan memiliki gugus silanol dan siloksan. Sedangkan pengaruh *Aging* berupa penurunan jari-jari pori, volume pori serta luas permukaan yang ditandai dengan pergeseran jari-jari pori menjadi lebih kecil pada adsorben silika dengan *Aging* yang lebih besar. Dengan demikian, silika hasil sintesis dapat diaplikasikan sebagai adsorben maupun bahan komposit.

Kata Kunci: Adsorben, Silika, Porositas, *Aging*

Abstract.

The level of air pollution is directly proportional with the increasing of waste producer source. The compounds produced by waste producer are carbon oxides, sulfur oxides and nitrogen oxides. One of the way to reduce the impact of air pollution is by using adsorbents such as silica. Silica having a reversible nature is used to adsorb contaminants. In adsorption, the porosity of silica used as the adsorbate. Silica can be synthesized from a variety of materials, such as Lusi, and with several kind of methods, such as hydrothermal. In this research, Silica is synthesized in order to determine the effect of Aging to the porosity of the silica and the quality of silica adsorbent that is produced. Aging variations used are 20, 24, 28 and 32 hours. The results showed that the silica adsorbent which is produced has 98.9% of purity and has a cluster of silanol and siloxane. While the influence of Aging such as a decrease of pore radius, pore volume and surface area that was marked by a shift of pore radius being smaller pores in silica adsorbents with larger Aging. Thus, the results of the synthesis of silica can be applied as an adsorbent and composite materials.

Keywords : Adsorbent, Silica, Porosity, Aging

PENDAHULUAN

Pencemaran lingkungan merupakan salah satu masalah yang paling banyak didiskusikan setiap tahunnya. Misalnya pada pencemaran udara, pencemaran dapat diidentifikasi melalui jumlah polutan berupa asap dan gas yang terkonsentrasi disuatu lingkungan dalam rentang waktu tertentu.

Tingkat pencemaran udara berbanding lurus dengan pertambahan sumber penghasil limbah.

Adapun senyawa utama yang dihasilkan oleh kendaraan bermotor adalah oksida karbon (CO_x), oksida sulfur (SO_x), dan oksida nitrogen (NO_x) (Sugiarti, 2009). Menurut Hickman (1999), dalam 1 liter pembakaran bahan bakar menghasilkan sekitar 30 gram oksida nitrogen.

Sedangkan kemungkinan oksida nitrogen yang dihasilkan dari pembakaran bahan bakar yaitu NO, NO₂, N₂O, N₂O₃, N₂O₄, N₂O₅, dan NO₃ (Hadiwidodo, 2006).

Untuk menanggulangi pencemaran udara, perlu dilakukan pemisahan unsur pencemar. Adapun hal yang dapat dilakukan adalah dengan menggunakan material penyerap. Material penyerap dibagi menjadi dua yaitu adsorben dan adsorben. Perbedaan antara adsorben dan adsorben adalah letak dimana terjadinya penyerapan. Pemilihan antara adsorben atau adsorben sebagai material penyerap disesuaikan dengan tujuan penggunaan. Dalam bahasan ini dikonsentrasikan pada adsorben, lebih khusus lagi adalah porositas adsorben.

Porositas adalah hal yang sangat penting bagi adsorben. Hal tersebut dikarenakan porositas merupakan tempat terjadinya adsorpsi. Semakin besar porositas suatu adsorben, maka semakin besar pula kemampuan adsorpsi dari adsorben tersebut. Porositas adsorben inilah yang menjadi fokus penelitian terdahulu tentang adsorben. Diantaranya adalah adsorben silika dari sekam padi untuk paraquat diklorida yang menghasilkan luas permukaan 43,442 m²/g, volume pori 0,151 cc/g dengan diameter pori 15,233 Å (Huda, 2012). Selain itu, peningkatan suhu aktivasi menurunkan daya adsorpsi akibat dari penurunan porositas (Arista, 2011). Dengan memanfaatkan porositas, silika dapat dijadikan sebagai adsorben (Zamani, 2009).

Silika adalah bahan alam yang sangat melimpah di Indonesia yang terkandung dalam berbagai unsur anorganik seperti pasir, lumpur, sekam padi dan lain-lain. Penelitian terdahulu telah berhasil mensintesis silika yang berasal dari pasir kuarsa Bancar Tuban (Nisak dkk, 2013) dan dari lusi (Rosmawati dkk, 2013), pasir kuarsa Bangka (Meirawati, 2013), sekam padi (Sembiring, 2007) dan Tetraethylorthosilicate (Ummah, 2013) yang menghasilkan kemurnian lebih dari 95%. Adapun klasifikasi silika (SiO₂) dibagi dalam 4 karakter dasar silika yaitu struktur kristal, dispersitas, komposisi permukaan dan porositas (Unger, 1979).

Aging merupakan proses dimana telah terbentuknya gel hasil titrasi yang kemudian ikatan

antar partikelnya berubah seiring bertambahnya waktu. *Aging* dimulai saat berakhirnya ikatan gel yang terakhir dari proses titrasi. Pada proses ini ikatan kimia antar partikel dapat terjadi meskipun telah selesai proses pembentukan gel. Proses *aging* memungkinkan untuk mengatur ulang struktur silika (Kraume, 2002). Beberapa laporan menunjukkan bahwa *aging* biasanya dilakukan dalam temperatur rendah dengan waktu yang bervariasi antara 5-48 jam (Nisak, 2013). Pada laporan penelitian lainnya, material dapat di *aging* hingga 72 jam (Goncalves, 2008).

BAHAN DAN METODE

Alat dan Bahan

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas kimia (1000 mL, 500 mL), gelas ukur, pipet, spatula, *Stirring Magnetic, Magnetic Stirrer*, kertas saring, neraca digital, kertas pH, termometer, furnice, ayakan. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah lumpur Sidoarjo, NaOH, HCl, Aquades.

PROSEDUR KERJA

Pretreatment

Lumpur Sidoarjo (Lusi) yang masih dalam keadaan basah dikeringkan. Setelah kering, homogenkan ukuran Lusi dengan cara menumbuknya kemudian di ayak. Lusi yang sudah homogen direndam dalam HCl 12 M selama 24 jam kemudian cuci dan keringkan kembali.

Hydrothermal

Lusi yang telah melalui tahap pretreatment ditimbang 10 gram tiap sekali sintesis. Kemudian tambahkan NaOH 7 M sebanyak 60 mL dan diaduk selama ±1-2 jam pada suhu 80 °C. Setelah kering, tambahkan 250 mL aquades kemudian saring.

Kopresipitasi

Hasil dari proses *hydrothermal* ditambahkan HCl 2 M ±250 mL hingga muncul endapan dan mencapai pH 4. Endapan silika yang berhasil terbentuk pada tahap sintesis didiamkan selama 20-32 jam. Selanjutnya silika dicuci menggunakan aquades dan disaring kemudian dikeringkan.

Finishing

Pembentukan butiran silika dengan cara meneteskan Na₂SiO₃ pada serbuk silika dengan perbandingan 1:2.

Tahap Karakterisasi silika

Silika dikarakterisasi menggunakan instrumen SAA sebagai data utama. SAA digunakan untuk mengetahui tingkat porositas silika yang dihasilkan. Selain SAA, silika juga dikarakterisasi menggunakan FTIR untuk mengetahui gugus fungsi yang dimiliki silika serta XRF sebagai konfirmasi kemurnian silika sebagai salah satu karakter dasar silika.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Silika

Tabel 1 Hasil sintesis silika dari lusi

Waktu Aging (Jam)	Massa (g)	Konsumsi HCl (ml)	Waktu titrasi (menit)
20	1,73	250	50
24	1,89	245	60
28	2,31	250	55
32	1,18	240	55

Pada proses sintesis, kecepatan reaksi antara NaOH dan Lusi meningkat bergantung pada proses *hydrothermal*. Sedangkan kuantitas silika yang dihasilkan bergantung pada kuantitas natrium yang mampu berikatan dengan silika dari lusi. Selain itu, pH akhir larutan pada titrasi juga mempengaruhi kuantitasnya. Dari tabel diatas, dapat diketahui bahwa konsumsi HCl dengan pH akhir 4 sebesar 245 mL dengan lama titrasi HCl 55 menit.

Hasil Uji FTIR

Tabel 2 Hasil uji FTIR silika dari lusi

Gugus Fungsi	Bilangan Gelombang Silika (cm ⁻¹)		
	Komersil	pH 4 Sintesis	pH 4 (Pribadi, 2013)
Vibrasi Si-O terdeformasi	467	463	471
Vibrasi Si-O-Si	806	799,95	815
Vibrasi Si-O-Si terdeformasi	-	947	-
Vibrasi ≡Si-O, ikatan antar silika	1114	1102	1108
Vibrasi H-O-H, molekul air teradsorpsi	1624	1638	1623
Vibrasi molekul air teradsorpsi	3469	3425	3457

Dari data diatas, jika dibandingkan dengan penelitian terdahulu, FTIR hasil sintesis memiliki

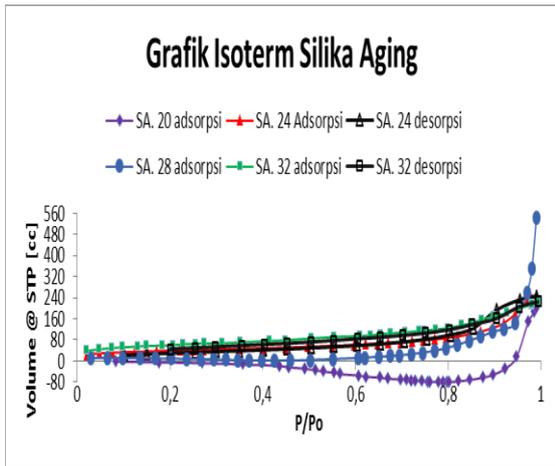
bentuk grafik yang mirip serta memiliki bilangan gelombang yang masih dalam rentang bilangan gelombang yang relevan. Terjadi pelebaran pada grafik silika sintesis seperti pada bilangan gelombang 1102 cm⁻¹ dan 3425 cm⁻¹. Hal ini menunjukkan bahwa gugus fungsi yang bervibrasi memiliki bilangan gelombang berbeda antara gugus fungsinya. Hal tersebut dikarenakan peristiwa *synerisis* dan *ostwald ripening* yang terjadi dipengaruhi oleh kondensasi antara anion silika dan silanol. Selain itu, pH akhir titrasi mempengaruhi bentuk dan bilangan gelombang yang terbaca. Semakin rendah pH akhir titrasi maka semakin berkurang pelebaran bilangan gelombang silika yang dihasilkan (Pribadi, 2013), namun semakin rendah rendah pH akhir sintesis maka intensitas vibrasi gugus-gugus fungsi semakin tinggi (Sriyanti, 2005).

Hasil Uji XRF

Silika pH 4 hasil sintesis memiliki kemurnian 98,9%, sedangkan kemurnian silika komersil sebesar 99,2%. Pada penelitian terdahulu silika pH 4 yang dihasilkan memiliki kemurnian 98,81% (Fadli, 2013) dan 97,60% (Pribadi, 2013). Terjadi perbedaan tingkat kemurnian dari hasil sintesis silika, dimana silika yang dihasilkan memiliki tingkat kemurnian yang lebih tinggi daripada penelitian terdahulu. Hal ini dapat terjadi karena terdapat beberapa faktor yang mempengaruhi kemurnian silika, diantaranya adalah pH akhir sintesis, proses pencucian silika dan perlakuan pemanasan silika. pH akhir sintesis mempengaruhi kemurnian dikarenakan pembentukan silika sangat dipengaruhi oleh aktivitas pertukaran ion antara Na₂SiO₃ dengan HCl. Pertukaran ion ini menghasilkan pula senyawa pengotor berupa NaCl. Pada pH netral pertukaran antar ion seimbang sehingga dalam proses ini yang terbentuk adalah NaCl, tetapi pada pH yang lebih rendah pertukaran ion tidak lagi membentuk garam NaCl melainkan kemungkinan mengikis senyawa oksida silika yang terbentuk. Hal ini menyebabkan menurunnya massa silika yang dihasilkan (Pribadi, 2013). Proses pencucian silika memberikan peluang mendapatkan kemurnian tinggi dikarenakan proses pencucian ini

dilakukan untuk menghilangkan senyawa pengotor dan senyawa lain yang terbentuk pada proses titrasi. Senyawa pengotor yang ada akan terlarut pada aquades dan terpisah dari endapan silika ketika proses pencucian serta ikut terbuang.

Hasil Uji SAA-BET



Gambar 1 Grafik isoterm silika *aging*

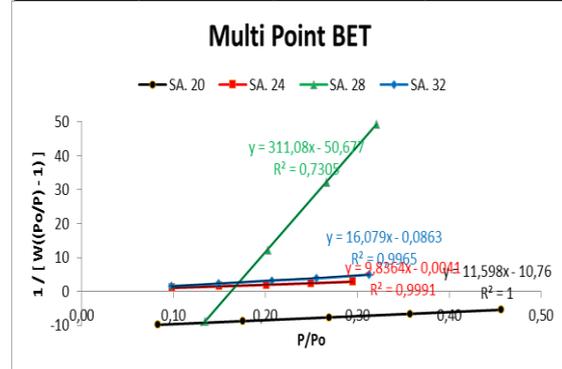
Terdapat 6 jenis grafik isoterm menurut klasifikasi Brunnauer, Deming, Deming, dan Teller (BDDT). Dari klasifikasi tersebut dapat dibedakan bahwa grafik isoterm SA. 20 dan SA. 28 merupakan grafik isoterm tipe III, sedangkan SA. 24 dan SA. 32 merupakan grafik isoterm tipe IV. Grafik isoterm tipe III mengindikasikan bahwa interaksi yang terjadi antara adsorben dan adsorbat lemah. Interaksi lemah ini mengakibatkan sedikitnya adsorbat yang teradsorpsi pada kondisi tekanan relatif rendah, tetapi interaksi akan menjadi lebih kuat ketika adsorbat teradsorpsi pada pori adsorben. Sedangkan grafik isoterm tipe IV mengindikasikan grafik adsorpsi yang membentuk monolayer-multilayer. Pada grafik ini terdapat *hysteresis loop* yang menunjukkan proses teradsorpsi dan terdesorpsinya adsorbat pada adsorben. Terbentuknya *hysteresis loop* merupakan akibat dari lebih rendahnya adsorbat yang teradsorpsi pada tekanan relatif tertentu dan lebih besarnya adsorbat yang terdesorpsi pada tekanan tertentu.

Dari gambar adsorpsi isoterm dapat digunakan untuk menentukan persamaan BET silika. Persamaan BET silika digambarkan berupa

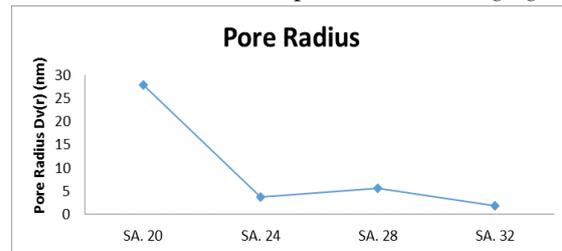
data linier yang terbentuk oleh tekana relatif (P/P_o) dengan $1/[W((P_o/P) - 1)]$, sehingga dapat diketahui luas permukaan silikanya.

Tabel 3 Data persamaan BET

Silika	Slope	Intercept	Konstanta BET
SA. 20	11,598	-10,76	-0,078
SA. 24	9,8364	-0,0041	-2391,170
SA. 28	311,08	-50,677	-5,138
SA. 32	16,079	-0,0863	-185,137

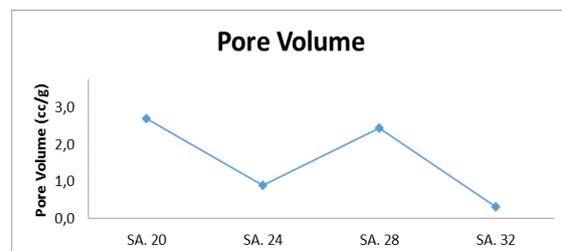


Gambar 2 Grafik multi point BET silika *aging*



Gambar 3 Grafik pore radius silika *aging*

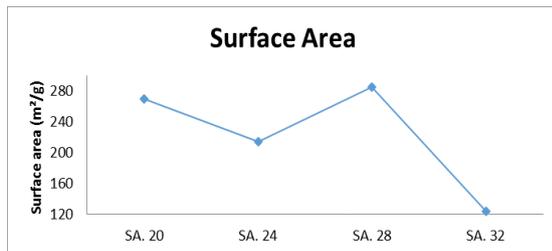
Dari gambar diatas dapat diketahui bahwa jari-jari pori adsorpsi SA. 20, SA. 24, SA. 28, SA. 32 masing-masing sebesar 27,8558 nm, 3,6688 nm, 5,5392 nm, 1,9196 nm. Jari-jari pori adsorpsi silika pada SA. 20 jauh lebih besar dibandingkan SA. 24, 28 dan 32. Hal ini dikarenakan silika mengalami proses aglomerasi dan agregasi yang berlangsung lambat sehingga pembentukan pori berlangsung lambat. Agregasi dan aglomerasi pada silika diakibatkan oleh *synerisis* dan *ostwald ripening*.



Gambar 4 Grafik pore volume silika *aging*

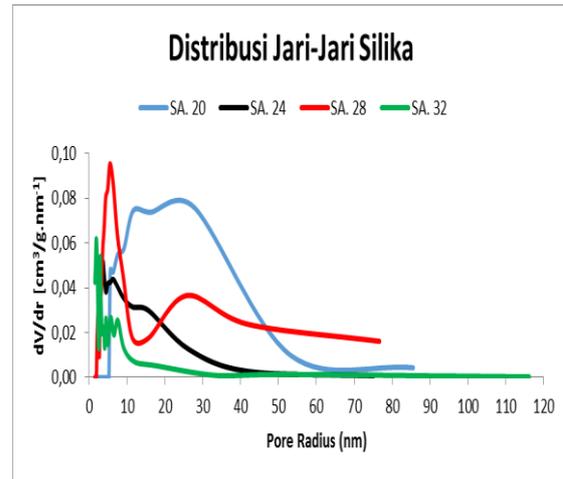
Dari gambar diatas dapat diketahui volume pori adsorpsi SA. 20, SA. 24, SA. 28, SA. 32 masing-masing sebesar 2,695 cc/g, 0,898 cc/g, 2,432 cc/g, 0,315 cc/g. Terbentuknya volume pori berkaitan dengan proses *aging*. Dimana selama proses *aging* terjadi 2 kemungkinan interaksi antar molekul yaitu *synerisis* atau *ostwald ripening*.

Pada *synerisis*, 2 gugus hidroksil dipermukaan silika dapat saling berikatan dan membentuk gugus siloksan. Pembentukan gugus siloksan membuat fluida yang berada didalam pori terdorong keluar. Keluarnya fluida disebabkan karena gugus siloksan membutuhkan banyak ruang sehingga memungkinkan pori yang terbentuk di awal menjadi lebih kecil atau terbagi menjadi berpori terbuka dan berpori tertutup. Sedangkan pada *ostwald ripening* terjadi kerusakan ikatan antar silika yang kemudian perlahan mengendap. Pengendapan ini mengakibatkan pori pada partikel yang lebih besar terisi oleh partikel yang lebih kecil.



Gambar 5 Grafik surface area silika *aging*

Dari gambar diatas dapat diketahui bahwa luas permukaan adsorpsi SA. 20, SA. 24, SA. 28, SA. 32 masing-masing sebesar 270,2 m²/g, 214,1 m²/g, 284,9 m²/g, 123,6 m²/g. Luas permukaan silika bergantung pada luas permukaan pori eksternal dan luas permukaan pori internal. Pada umumnya, luas permukaan eksternal merupakan faktor dominan dari luas permukaan keseluruhan. Namun, faktor luas permukaan internal tidak dapat dikesampingkan karena luas permukaan internal yang berperan dominan dalam proses adsorpsi. Selanjutnya, peran ini sangat bergantung pada ukuran pori.



Gambar 6 Grafik distribusi jari-jari silika *aging*

Gambar diatas dapat diketahui puncak adsorpsi dari volume pori yang dipengaruhi oleh jari-jari pori. Pada SA. 20 pori baru muncul pada jari-jari ±5 nm dengan volume 0,05 cm³/g.nm⁻¹. Pada silika tipe SA. 20 terjadi peningkatan volume pori secara signifikan pada rentang 5-23 nm dengan volume pori paling besar 0,08 cm³/g.nm⁻¹. Pada SA. 24 puncak volume pori sebesar 0,05 cm³/g.nm⁻¹ dan memiliki banyak volume pori di rentang jadi-jari pori <10 nm. Hal ini menunjukkan mayoritas volume pori berada di pori berukuran *mesopore*. Pada SA. 28 puncak volume pori mendekati 0,1 cm³/g.nm⁻¹ dengan jari-jari dibawah 10 nm tanpa adanya mayoritas pori, kemudian pelebaran pori disertai penurunan volume pori. Pada SA. 32 tidak jauh berbeda dengan SA. 24. Pada SA. 28 pori mampu mengadsorp hingga 0,06 cm³/g.nm⁻¹ serta memiliki mayoritas pori memiliki jari-jari pori <10 nm. Mayoritas pori yang berada 10 nm dapat diartikan SA. 32 memiliki ukuran pori *mesopore*.

PENUTUP

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan maka dapat disimpulkan bahwa silika yang dihasilkan memiliki pori *macropore* dan *mesopore*. *Aging* mempengaruhi ukuran pori silika melalui proses *synerisis* dan *ostwald ripening* yang menghasilkan pengecilan ukuran pori. Hal tersebut mengakibatkan pada penurunan jari-jari pori, volume pori hingga luas permukaan pori. Dari analisis distribusi pori silika terlihat adanya pergeseran pori dominan dari rentang yang besar ke rentang yang lebih kecil.

Massa silika yang dihasilkan dari 10 gram Lusi sekitar 1,2-2,3 gram dengan konsumsi HCl ± 250 ml dan dengan waktu rata-rata titrasi 55 menit. Didapatkan pula kemurnian yang tinggi dan hampir setara dengan silika komersil yakni sebesar 98,9% dan kemurnian unsur silika sebesar 97,2% serta adsorben silika yang dihasilkan memiliki gugus silanol dan siloksan.

Pada penelitian selanjutnya perlu diperhatikan keteliti perhitungan stokiometri bahan untuk mendapatkan hasil yang lebih optimal. perlakuan pengeringan pada silika, rentang waktu dan suhu pengeringan stabil.

DAFTAR PUSTAKA

- Arista, Feby., Budiono, Agung., Risanti, Doty D., 2011. "*Pembuatan Dan Karakterisasi Adsorben Dari Lumpur Lapindo Untuk Pemurnian Ethanol*". Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh Nopember
- Goncalves M.L., Dimitrov L.D., Jorda M.H., Wallau M., Ernesto A., Urquieta-Gonzalez 2008. "Synthesis of mesopori ZSM-5 by crystallisation of aged gels in the presence of cetyltrimethylammoniumcations", *Catalysis Today*, 133–135, 69–79.
- Hadiwidodo, Mochtar., Huboyo, Haryono S., 2006. "Pola Penyebaran Gas No₂ Di Udara Ambien Kawasan UtaraKota Semarang Pada Musim Kemarau Menggunakan Program ISCST3". *Jurnal PRESIPITASI* Vol.1 No.1, ISSN 1907-187X
- Huda, Muhammad Miftakhul. 2012. "*Adsorpsi-Desorpsi Senyawa Paraquat Dikloroda dengan silika gel dari limbah ampas tebu (Saccharum officinarum)*". Yogyakarta: Universitas Islam Negeri Sunan Kalijaga
- Kraume, M., Arlt, W., Buback, M. 2002. "*Synthesis of silica aerogels and their application as a drug delivery system*". Berlin: der Technischen Universität Berlin
- Meirawati, Dian., Wardhani, Sri., Tjahjanto, Rachmat Triandi. 2013. "Studi Pengaruh Konsentrasi HCl Dan Waktu *Aging* (Pematangan Gel) Terhadap Sintesis Silika Xerogel Berbahan Dasar Pasir Kuarsa Bangka". *Kimia.Studentjournal*, Vol. 02, No. 02, pp. 524-531
- Nisak, Fitriatun. 2013. Analisis Porositas Nanosilika Berbasis Pasir Alam Yang Disintesis Dengan Metode Kopresipitasi. Surabaya: Universitas Negeri Surabaya
- Pribadi, Akhmad Januar Hairin. 2013. Pengaruh pH Akhir Larutan Pada Sintesis Nanosilika Dari Bahan Lusi Dengan Metode Kopresipitasi. Surabaya: Universitas Negeri Surabaya
- Rosmawati, Angelina., Tjahjanto, Rachmat Triandi., Prananto, Yuniar Ponco. 2013. "Variasi Metode Preparasi Gel Pada Sintesis Aerogel Silika Dari Lumpur Lapindo". *Kimia.studentjournal*, Vol. 01, No. 02, pp. 161-167
- Sembiring, Simon., Karo-Karo, Pulung. 2007. "Pengaruh Suhu Sintering Terhadap Karakteristik Termal Dan Mikrostruktur Silika Sekam Padi". *J. Sains MIPA*, Vol. 13, No. 03, Hal 233-239 ISSN: 1979-1873
- Sriyanti., Taslimah., Nuryono., Narsito. 2005. "*Pengaruh Keasaman Medium Dan Imobilisasi Gugus Organik Pada Karakter Silika Gel Dari Abu Sekam Padi*". *JSKA*. Vol. VIII. No. 3.
- Sugiarti. 2009. "Air Pollutan Gasses and The Influence of Human Health". *Jurnal Chemica* Vol. 10 No. 1 hal 50-58
- Ummah, Ida Latiful. 2013. Sintesis Silika Gel Menggunakan Metode Sol-Gel Dan Aplikasinya Terhadap Absorpsi Kelembaban Udara. Surabaya: Universitas Negeri Surabaya
- Unger K.K., 1979. "Porous Silica: its properties and use as support in column liquid chromatography". Amsterdam: Elsevier Scientific Publishing Company
- Zamani, Cyrus.,Illa, Xavi., Abdollahzadeh-Ghom, Sara., Morante, J. R., Rodriguez, Albert Romano. 2009. "Mesoporous Silica: A Suitable Adsorbent for Amines". *Nanoscale Res Lett* 4:1303-1308 Doi 10.1007/s11671-009-9396-5/