



## Sintesis Silika Kristalin Menggunakan Surfaktan Cetiltrimetilamonium Bromida (CTAB) dan Trimetilamonium Klorida (TMACl) sebagai Pencetak Pori

Bimo Tunggal Dipowardani<sup>a</sup>, Sriatun<sup>a\*</sup>, Taslimah<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Inorganic Chemistry Laboratory, Chemistry Department, Faculty of Sciences and Mathematics, Diponegoro University, Jalan Prof. Soedarto, Tembalang, Semarang 50275

\* Corresponding author: [sriatun@live.undip.ac.id](mailto:sriatun@live.undip.ac.id)

### Article Info

**Keywords:**  
synthesis,  
crystalline silica,  
surfactant, pore  
template

**Kata kunci:**  
sintesis, silika  
kristalin, surfaktan,  
pencetak pori

### Abstract

Synthesis of crystalline silica was done with sodium silicate and TEOS as silicate source and CTAB and TMACl surfactant as pore template to determine correlation of concentration and pH variation to crystallinity, specific surface area, total pore volume and average pore radius of silica crystalline. Sodium silicate was obtained from reaction between glass and sodium carbonate at temperature 900°C. In this research was made 2 kinds of variation. First was concentration of CTAB and TMACl (0.2 M and 0.1 M; 0.4 M and 0.2 M; 0.6 M and 0.3 M). Second variation was pH (9, 10, 11). Crystalline silica was synthesized by mixing sodium silicate solution, TEOS, CTAB, TMACl and aquadest through hydrothermal and calcination process. From XRD and FTIR analysis indicated final product were not pure stishovite, quartz and cristobalite. Average pore radius, specific surface area and total pore volume from products were 10,066 Å; 30.8292 m<sup>2</sup>/g and 15.517 cm<sup>3</sup>/g for CTAB 0.4 M and TMACl 0.2 M sample; 9.597 Å, 40.2642 m<sup>2</sup>/g and 19.320 cm<sup>3</sup>/g for CTAB 0.6 M and TMACl 0.3 M sample; 9.500 Å; 38.7657 m<sup>2</sup>/g and 18.413 cm<sup>3</sup>/g for pH 10 sample.

### Abstrak

Telah dilakukan sintesis silika kristalin menggunakan natrium silikat dan TEOS sebagai sumber silika serta surfaktan CTAB dan TMACl sebagai pencetak pori untuk menentukan pengaruh variasi konsentrasi surfaktan dan pH terhadap luas permukaan spesifik, volume total pori dan ukuran pori rata-rata silika kristalin. Natrium Silikat didapat dari reaksi antara kaca dengan natrium karbonat pada suhu 900°C. Pada penelitian ini dibuat 2 macam variasi. Pertama adalah variasi konsentrasi CTAB dan TMACl (0,2 M dan 0,1 M; 0,4 M dan 0,2 M; 0,6 M dan 0,3 M). Kedua adalah variasi pH (9, 10 dan 11). Sintesis dilakukan dengan mencampurkan larutan natrium silikat, TEOS, CTAB, TMACl dan akuades yang melalui proses hidrotermal dan kalsinasi. Karakterisasi hasil penelitian dilakukan dengan metode analisis XRD, FTIR, dan adsorpsi gas N<sub>2</sub> melalui persamaan BET. Dari hasil analisis XRD dan FTIR menunjukkan bahwa material silika kristalin hasil sintesis merupakan jenis stishovit, kuarsa dan kristobalit yang belum murni. Ukuran pori rata-rata, luas permukaan spesifik dan volume total pori dari produk adalah 10,066 Å; 30,8292 m<sup>2</sup>/g dan 15,517 cm<sup>3</sup>/g untuk sampel dengan konsentrasi CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M; 9,597 Å, 40,2642 m<sup>2</sup>/g dan 19,320 cm<sup>3</sup>/g untuk sampel dengan konsentrasi CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3 M; 9,500 Å; 38,7657 m<sup>2</sup>/g dan 18,413 cm<sup>3</sup>/g untuk sampel dengan pH 10.

## 1. Pendahuluan

Silika kristalin sebagai material berpori banyak diaplikasikan sebagai adsorben. Material tersebut mempunyai kestabilan yang tinggi terhadap pengaruh mekanik, temperatur dan tingkat keasaman. Salah satu metode yang sedang berkembang untuk sintesis silika kristalin adalah dengan menambahkan suatu bahan tertentu seperti surfaktan sebagai *template* (cetakan). Penggunaan surfaktan diharapkan dapat meningkatkan pori-pori partikel sekaligus membentuk struktur pori menjadi lebih seragam.

Alternatif sumber silika yang dapat digunakan adalah kaca. Kaca mempunyai kandungan utama silika sampai 72,4% dan oleh karenanya dapat dilakukan ekstraksi terhadap kaca untuk mendapatkan silika tersebut. Sumber silika lain yang dapat digunakan sebagai sumber silika pendukung adalah tetraetilortosilikat (TEOS).

Ji, *dkk* [1] telah mensintesis silika kristalin MCM-41 dengan menggunakan silika dan surfaktan CTAB sebagai agen pencetak yang digunakan sebagai adsorben yang memperlihatkan kapasitas Bovine Serum Albumin (BSA) yang tinggi pada suatu protein. Nugandini [2] telah berhasil mensintesis material berpori dengan sumber silika dari abu sekam padi dan penambahan sumber silikat dan menggunakan campuran dua surfaktan, yaitu CTAB dan TMACl sebagai molekul pengarah. Penelitian yang dilakukan Kim *dkk* (2000) telah berhasil mensintesis silika MCM-41 menggunakan TMACl sebagai agen pencetak yang dapat digunakan sebagai agen seleksi enantio dalam proses adisi TMSN menjadi benzaldehid(II). Whang, *dkk* [3] mensintesis silika MCM-41 dengan menggunakan surfaktan TMACl sebagai agen pencetak yang digunakan sebagai agen katalis. Pada penelitian ini dilakukan sintesis silika kristalin menggunakan natrium silikat dan TEOS sebagai sumber silika serta surfaktan CTAB dan TMACl sebagai pencetak pori dengan harapan produk silika kristalin mempunyai radius pori yang lebih besar dan distribusi pori

## 2. Metodologi Penelitian

### Alat dan Bahan

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah peralatan gelas, ayakan 170 mesh, *hot plate*, pengaduk magnet, pH meter, oven ARISTON *type* F-16-EM-IN-02, furnace Vulcan 3-130, kertas saring *Whatman* 51, difraktometer sinar X Shimadzu 6000, spektroskopi serapan atom Shimadzu, FT-IR Shimadzu 8210 PC, dan BET *Nova 1000 High Speed Gas Sorption Analyzer*. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah kaca dr gelas bening, natrium karbonat ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ), asam asetat ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ ), tetraetilortosilikat (TEOS), akuades ( $\text{H}_2\text{O}$ ), cetiltrimetilamonium bromida (CTAB) dan trimetilamonium klorida (TMACl).

### Cara Kerja

#### Preparasi Sampel Kaca

Kaca dari gelas bening dibersihkan dari pengotor-pengotornya kemudian dikerngkan. Kaca yang telah bersih dan kering tersebut kemudian dihaluskan dan diayak menggunakan ayakan 170 mesh

#### Sintesis Natrium Silikat

Sebanyak 10 gram serbuk kaca halus ditambah 17,6 gram natrium karbonat ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ) kemudian dipanaskan dalam *furnace* pada suhu  $900^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Hasil reaksi ini berupa padatan serbuk natrium silikat. Padatan serbuk natrium silikat tersebut dilarutkan dalam akuades 200 mL, kemudian disaring sehingga diperoleh filtrat dan kemudian larutan natrium silikat dianalisis dengan AAS untuk mengetahui kandungan silika terlarut.

#### Sintesis Silika Kristalin

20 mL natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) ditambah dengan 5 mL tetraetilortosilikat (TEOS), 10 mL cetiltrimetilamonium bromida (CTAB) dan 10 mL trimetilamonium klorida (TMACl) dengan variasi konsentrasi antara cetiltrimetilamonium bromida (CTAB) dan trimetilamonium klorida (TMACl) adalah 0,2 M dan 0,1 M; 0,4 M dan 0,2 M; 0,6 M dan 0,3 M. Larutan campuran tersebut diaduk selama 2 jam pada suhu kamar hingga terbentuk gel dan didiamkan selama 24 jam. Selanjutnya ditempatkan dalam wadah teflon tertutup dan dimasukkan ke dalam oven digital dengan suhu  $150^\circ\text{C}$  selama 48 jam. Endapan yang terbentuk didiamkan selama 3 hari. Tahap selanjutnya endapan disaring dan dicuci dengan akuades hingga bersih dan dikeringkan pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 1 jam kemudian ditimbang dan dilakukan pengulangan prosedur pengeringan sampai didapatkan berat yang konstan. Tahap selanjutnya adalah kalsinasi pada suhu  $550^\circ\text{C}$  selama 5 jam. Pengulangan sintesis dan karakterisasi material produk dengan variasi pH 9, 10 dan 11 menggunakan konsentrasi cetiltrimetilamonium bromida (CTAB) 0,4 M dan trimetilamonium klorida (TMACl) 0,2 M.

#### Karakterisasi Silika Kristalin

Material hasil dikarakterisasi dengan difraktometer sinar-X, Spektrofotometer FTIR dan BET.

Kode	Keterangan
M-1	CTAB 0,2 M DAN TMACl 0,1 M pH = 11,91
M-2	CTAB 0,4 M DAN TMACl 0,2 M pH = 11,85
M-3	CTAB 0,6 M DAN TMACl 0,3 M pH = 11,92
M-4	CTAB 0,2 M DAN TMACl 0,1 M pH = 9
M-5	CTAB 0,2 M DAN TMACl 0,1 M pH = 10
M-6	CTAB 0,2 M DAN TMACl 0,1 M pH = 11

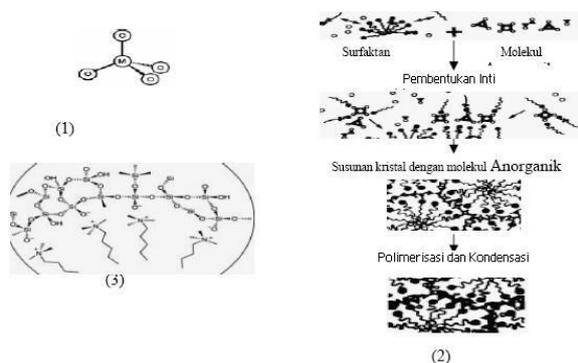
### 3. Hasil dan Pembahasan

#### Sintesis Silika Kristalin

Silika kristalin dibentuk dari pencampuran natrium silikat, TEOS, surfaktan CTAB dan TMACl dicampur disertai pengadukan membentuk gel. Pembentukan gel ini memperlihatkan adanya interaksi antara silikat dengan surfaktan yaitu terjadi reaksi polimerisasi kondensasi. Monomer-monomer dari silikat bereaksi secara adisi membentuk rantai polimer Si-O-Si dengan melepaskan molekul air H<sub>2</sub>O. Polimer tersebut kemudian berinteraksi dengan misel-misel surfaktan untuk membentuk inti kristal [4]. Fase gel tersebut merupakan awal dari pembentukan inti kristal yang merupakan hal penting dalam proses sintesis silika kristalin. Pembentukan inti kristal terjadi pada saat pemeraman (*Ageing*) pada suhu kamar yang dilakukan selama 24 jam.

Proses kristalisasi terjadi pada proses hidrotermal selama 48 jam dengan suhu 150°C. Gel amorf akan mengalami penataan ulang pada strukturnya oleh adanya pemanasan sehingga dapat terbentuk embrio inti kristal dan pada keadaan ini terjadi kesetimbangan antara embrio inti kristal, gel amorf sisa, dan larutan lewat jenuh. Tahap tersebut merupakan tahap pertumbuhan kristal dan proses tersebut berada pada keadaan metastabil. Jika gel amorf sisa larut kembali, maka akan terjadi pertumbuhan kristal dari embrio inti tersebut sampai gel amorf sisa tersebut habis dan terbentuk kristal dalam keadaan stabil. Tahap tersebut merupakan tahap pertumbuhan kristal [5]

Penambahan molekul organik cetiltrimetilammonium bromida (CTAB) dan trimetilammonium klorida (TMACl) berfungsi sebagai *template*. *Template* yang berupa kation CTA<sup>+</sup> dan TMA<sup>+</sup> difungsikan untuk menetralkan kerangka yang anionik [SiO<sub>4</sub>]<sup>4-</sup> [6]. Interaksi ionik tersebut yang menghasilkan embrio kristal dari silika kristalin.



Gambar 1 Skema pembentukan silika kristalin dengan surfaktan sebagai molekul pengarah (1)Unit bangunan primer, (2)Proses pembentukan kerangka silika kristalin [7] (3)Interaksi surfaktan [8]

Berdasarkan Gambar 1 tersebut dapat dijelaskan interaksi antara larutan silikat dengan surfaktan. Surfaktan cetiltrimetilammonium bromida (CTAB) dan trimetilammonium klorida (TMACl) akan membentuk suatu misel-misel untuk mengurangi tegangan permukaan, gugus-gugus hidrofobik akan berkumpul

dan kepala hidrofilik surfaktan akan saling menjauhi gugus hidrofobiknya sehingga terbentuknya suatu lingkaran silinder. Secara elektrostatis gugus hidrofilik (kepala surfaktan) akan berinteraksi dengan unit bangunan primer (*primary building unit*) dari TO<sub>4</sub>. Satuan bangun primer struktur silika kristalin adalah suatu tetrahedral terdiri atas satu atom pusat Si yang dikelilingi oleh empat atom oksigen, yaitu [SiO<sub>4</sub>]<sup>4-</sup> [9].

Tahap selanjutnya setelah proses hidrotermal adalah kalsinasi. Kalsinasi bertujuan untuk mendekomposisi surfaktan yang tertinggal pada pori material (Anwaril, 2005). Kalsinasi dilakukan dengan memanaskan sampel pada suhu tinggi. Kalsinasi yang dilakukan pada penelitian ini menggunakan suhu 550°C selama 5,5 jam yang jauh di atas suhu dekomposisi termal cetiltrimetilamonium bromida (CTAB) sebesar 300°C dan trimetilamonium klorida (TMACl) sebesar 250°C diharapkan mampu mendekomposisi surfaktan menjadi gas-gas CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O sehingga meninggalkan pori yang terbuka dengan ukuran yang sesuai dengan ukuran misel surfaktan.

Sintesis pada penelitian ini dilakukan pada pH basa dengan *range* pH 9-11. Pada pH tersebut akan terjadi polimerisasi ion-ion SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup> membentuk kerangka silika kristalin. Kerangka silika kristalin dipengaruhi oleh keberadaan anion dari silikat. *Range* pH tersebut sesuai dengan penelitian [10] yaitu pada pH basa > 7 akan terbentuk ion SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup> yang merupakan ion utama pembentuk kerangka silika kristalin.

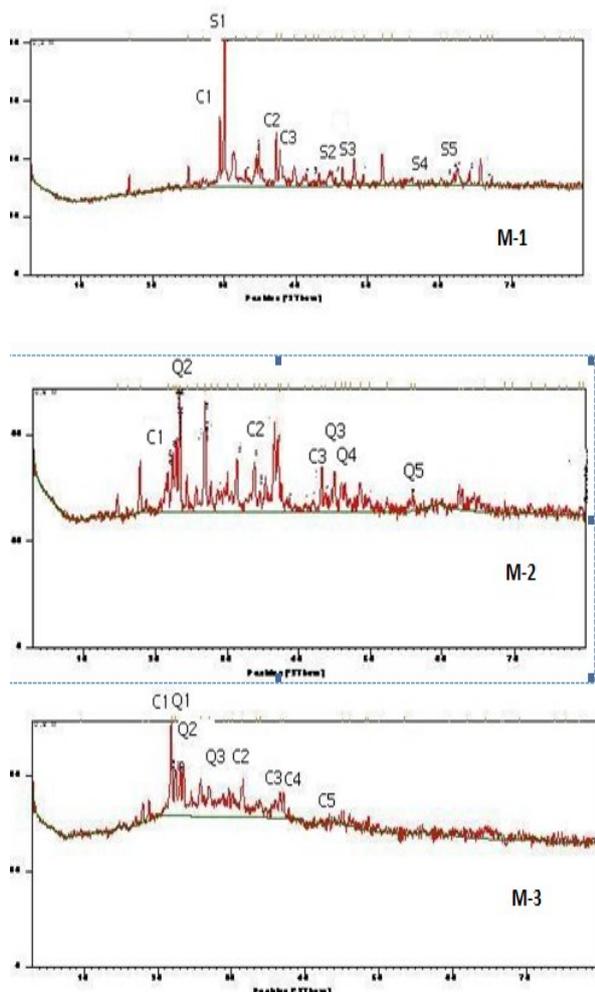
Untuk mengidentifikasi material hasil, dilakukan karakterisasi menggunakan difrakterometer sinar-X untuk mengetahui jenis kristal dan kekristalan material, spektrofotometer FTIR untuk mengidentifikasi gugus fungsi yang terdapat dalam material dan BET *surface area analyzer* untuk mengidentifikasi luas permukaan spesifik, volume total pori dan ukuran pori rata-rata silika kristalin.

#### Karakterisasi dengan Metode Difraksi sinar-X

Metode XRD (*X-Ray Diffraction*) merupakan suatu metode analisis kualitatif yang memberikan informasi mengenai kekristalan suatu mineral tertentu dalam sampel. Spektrum XRD dapat memberikan informasi mengenai puncak-puncak intensitas pada sudut 2θ tertentu dikarenakan setiap mineral mempunyai pola difraktogram yang karakteristik.

#### Pola Difraktogram Sinar X Sampel M-1, M-2 dan M-3

Pola difraksi pada sampel M-1, M-2, dan M-3 dapat dilihat pada Gambar 2



Gambar 2 Pola Difraktogram sampel M-1, M-2 dan M-3

Keterangan simbol :

S = Stishovit; C = Kristobalit; Q = Kuarsa

Keterangan Gambar :

M-1 : CTAB 0,2 M dan TMACl 0,1 M

M-2 : CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M

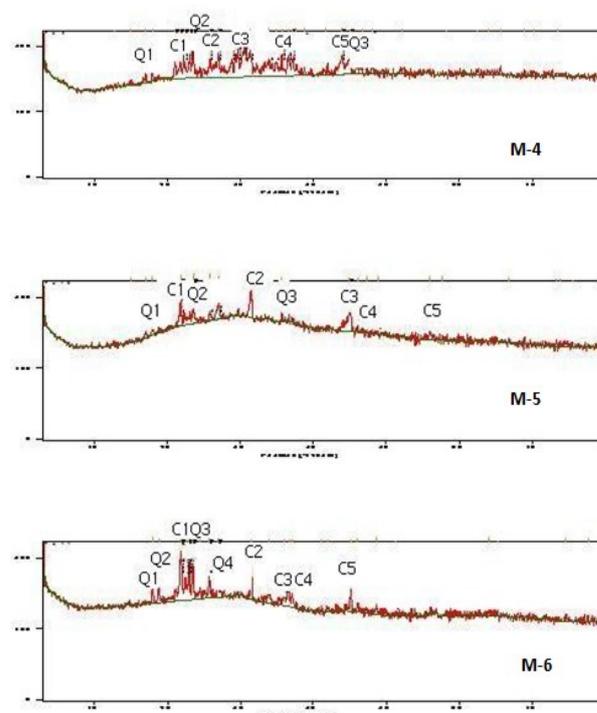
M-3 : CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3 M

Pola difraktogram sinar-X yang dihasilkan oleh sampel M-1, M-2 dan M-3 memperlihatkan puncak-puncak yang berbeda satu sama lain. Puncak tertinggi pada ketiga sampel mengalami pergeseran ke sudut  $2\theta$  yang lebih kecil dengan M-3 menunjukkan puncak tertinggi dengan sudut  $2\theta$  paling kecil yaitu  $21,8188^\circ$ . Pergeseran tersebut menunjukkan bahwa dengan kenaikan konsentrasi surfaktan yang digunakan dari sampel M-1, M-2 dan M-3, maka peluang untuk terbentuknya material mesopori semakin besar. Semakin tinggi konsentrasi surfaktan (jauh melampaui CMC CTAB yaitu  $8 \times 10^{-4}$  M dan TMACl yaitu  $2 \times 10^{-4}$  M), maka semakin banyak misel-misel yang terbentuk. Misel dengan jumlah banyak akan membentuk kerangka kristal yang lebih kuat karena lebih banyak unit bangunan primer  $\text{SiO}_4^{4-}$  yang berinteraksi dengan misel surfaktan. Kerangka kristal yang kuat membuat pori-pori kristal

tidak menyusut saat molekul surfaktan terdekomposisi pada proses kalsinasi. Identifikasi awal terbentuknya material mesopori adalah munculnya puncak-puncak tajam di daerah  $2\theta$  di bawah  $5^\circ$ . Kekristalan dari sampel-sampel yang ditunjukkan oleh pola difraktogram sinar-X menunjukkan sampel M-2 mempunyai kekristalan yang terbaik dibandingkan yang lain. Hal tersebut kurang sesuai sebab menurut [11] semakin tinggi konsentrasi surfaktan yang digunakan maka kristalinitasnya semakin baik. Kekurangsesuaian tersebut diduga disebabkan sintesis yang kurang sempurna sehingga mempengaruhi kristalinitas material hasil.

**Pola Difraktogram Sinar X Sampel M-4, M-5 dan M-6**

Sampel M-4, M-5 dan M-6 menggunakan rentang sudut  $2\theta$   $0^\circ$ - $80^\circ$ . Pola difraksi pada sampel M-4, M-5, dan M-6 dapat dilihat pada Gambar 3



Gambar 3 Pola Difraktogram sampel M-4, M-5 dan M-6

Keterangan simbol : C = Kristobalit; Q = Kuarsa

Keterangan Gambar :

M-4 : CTAB 0,4 M; TMACl 0,2 M; pH=9

M-5 : CTAB 0,4 M; TMACl 0,2 M; pH=10

M-6 : CTAB 0,4 M; TMACl 0,2 M; pH=11

Pola-pola difraktogram yang ditunjukkan pada sampel M-4, M-5 dan M-6 berlainan satu sama lain. Kecenderungan puncak-puncak yang terbentuk semakin teratur dan tajam dengan meningkatnya pH dari rentang pH 9-11 dengan pH 11 menunjukkan kekristalan yang paling baik. Hal ini disebabkan sampel M-6 dengan pH 11, keberadaan ion utama pembentuk kerangka silika kristalin yaitu  $\text{SiO}_4^{4-}$  terdapat dalam konsentrasi yang tertinggi dibandingkan dengan sampel M-4 dan M-5. sesuai dengan [10] pada  $\text{pH} > 7$  ion-ion pembentuk

kerangka silika kristalin yaitu  $\text{SiO}_4^{4-}$  dapat muncul yang kemudian akan terjadi proses polimerisasi membentuk kerangka silika kristalin. Ukuran basal spacing pada semua sampel rata-rata cukup kecil yaitu pada rentang  $1,20605\text{\AA} - 6,94676\text{\AA}$ . Berdasarkan hal tersebut, dapat diperkirakan bahwa ukuran pori yang didapatkan akan lebih banyak masuk ke dalam kategori mikropori ( $<20\text{\AA}$ ).

#### Identifikasi Senyawa Hasil Sintesis

Identifikasi senyawa hasil sintesis bertujuan untuk mengetahui secara spesifik produk yang didapat pada penelitian ini. Identifikasi dilakukan dengan cara memperkirakan produk yang didapat, kemudian dilakukan pencarian terhadap pola difraktogram sinar-X pada *database*. Langkah selanjutnya adalah membandingkan nilai-nilai  $2\theta$  dengan intensitas tinggi dari *database* tersebut dengan nilai-nilai  $2\theta$  dengan intensitas tinggi pada pola difraktogram sinar-X dari sampel-sampel. Database yang dipergunakan berasal dari JCPDS (Joint Committee on Powder Diffraction Standards) [12]. Hasil penelusuran database JCPDS dibandingkan dengan data dari sampel-sampel disajikan pada tabel 1.

Tabel 1 Identifikasi Sampel berdasarkan *database JCPDS* [12]

15-0026 (Stishovit, $\text{SiO}_2$ )		M-1	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
30,178	100	30,038	100,00
45,764	35	45,488	3,15
48,650	14	48,120	13,45
60,457	50	60,099	2,01
62,821	18	62,402	5,94

03-0419 (Kuarsa, $\alpha$ - $\text{SiO}_2$ )		M-2	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
26,585	100	26,901	86,30
36,493	60	36,987	51,98
40,225	30	40,916	3,75
42,399	50	42,026	5,84
68,420	80	68,727	5,73

02-0285 (Kristobalit)		M-3	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
21,985	100	21,819	100,00
28,439	8	28,875	19,19
31,462	9	31,484	38,62
36,080	13	36,556	22,58
36,381	4	36,983	22,38

39-1425 (Kristobalit, syn $\text{SiO}_2$ )		M-4	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
22,038	100	22,9796	80,82
28,493	60	28,8160	56,72
31,589	70	31,3205	95,76
36,190	80	36,5068	68,49
48,650	60	48,1177	22,82

03-0271 (Kristobalit, $\alpha$ - $\text{SiO}_2$ )		M-5	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
21,983	100	21,824	88,46
31,474	60	31,433	100,00
44,832	40	44,932	64,36
47,305	60	47,339	10,38
57,557	30	57,696	11,90

11-0695 (Kristobalit, syn $\text{SiO}_2$ )		M-6	
$2\theta$ (deg)	Int(%)	$2\theta$ (deg)	Int(%)
21,927	100	21,771	100
31,462	13	31,464	63,61
36,114	20	36,019	12,80
36,417	5	36,559	31,23
48,648	7	48,6027	13,83

Berdasarkan difraktogram sinar-X sampel M-1, M-2 dan M-3 terdapat puncak-puncak lain yang belum teridentifikasi. Hal tersebut menandakan material hasil belum murni karena masih bercampur dengan senyawa lain. Identifikasi puncak-puncak lain tersebut disajikan pada tabel 2.

Tabel 2 Identifikasi Puncak Lain

Sampel M-1		
$2\theta$ (deg)	Int(%)	Identifikasi
29,307	36,46	Kristobalit
37,206	26,37	Kristobalit
37,892	16,96	Kristobalit

Sampel M-2		
$2\theta$ (deg)	Int(%)	Identifikasi
21,736	25,99	Kristobalit
35,324	21,84	Kristobalit
43,196	32,33	Kristobalit

Sampel M-3		
$2\theta$ (deg)	Int(%)	Identifikasi
22,415	38,70	Kuarsa
23,507	52,92	Kuarsa
26,964	41,85	Kuarsa

Sampel M-4		
2θ(deg)	Int(%)	Identifikasi
17,960	29,03	Kuarsa
26,874	50,52	Kuarsa
45,071	50,38	Kuarsa

Sampel M-5		
2θ(deg)	Int(%)	Identifikasi
17,956	12,89	Kuarsa
25,790	30,35	Kuarsa
35,616	26,86	Kuarsa

Sampel M-6		
2θ(deg)	Int(%)	Identifikasi
17,902	23,28	Kuarsa
18,793	24,08	Kuarsa
22,995	71,73	Kuarsa
26,892	43,48	Kuarsa

Berdasarkan data dari tabel-tabel di atas terlihat bahwa sampel M-1 mirip dengan Stishovite (ID 15-0026), sampel M-2 mirip dengan Kuarsa α-SiO<sub>2</sub> (ID 03-0419), sampel M-3 mirip dengan Kristobalite syn (ID 39-1425), sampel M-4 mirip dengan Kristobalite (ID 02-0285), sampel M-5 mirip dengan Kristobalite α-SiO<sub>2</sub> (ID 03-0271) dan sampel M-6 mirip dengan Kristobalite syn (ID 11-0695). Gambar perbandingan antara pola difraktogram standar dan sampel dapat dilihat pada lampiran 4. Sampel-sampel dengan variasi konsentrasi memperlihatkan kecenderungan perubahan sifat fisik yang semakin menurun ditinjau dari indeks bias, kerapatan spesifik dan kekerasan seperti yang ditunjukkan tabel 3. Sampel-sampel dengan variasi pH tidak terjadi perubahan karena berdasarkan identifikasi didapatkan jenis silika kristalin yang sama.

Tabel 3 Sifat Fisik kristal Silika

Jenis Kristal	Kerapatan Spesifik	Kekerasan	Indeks Bias
Stishovit	4,29	7,5-8	1,799-1,826
Kuarsa-α	2,65	7	1,544-1,553
Kristobalite	2,33	6,5	1,485-1,487

Konsentrasi surfaktan yang digunakan berperan penting terhadap hasil identifikasi dan kecenderungan sifat fisik yang dimiliki ketiga sampel dengan variasi konsentrasi surfaktan yaitu sampel M-1 menggunakan konsentrasi CTAB 0,2 M dan TMACl 0,1 M; sampel M-2 menggunakan konsentrasi CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M; sampel M-3 menggunakan konsentrasi CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3 M. Proses kalsinasi dengan suhu dan waktu yang sama untuk ketiga sampel membuat sampel M-1 mengalami dekomposisi lebih cepat dibanding sampel M-2 dan M-3 dengan konsentrasi surfaktan lebih

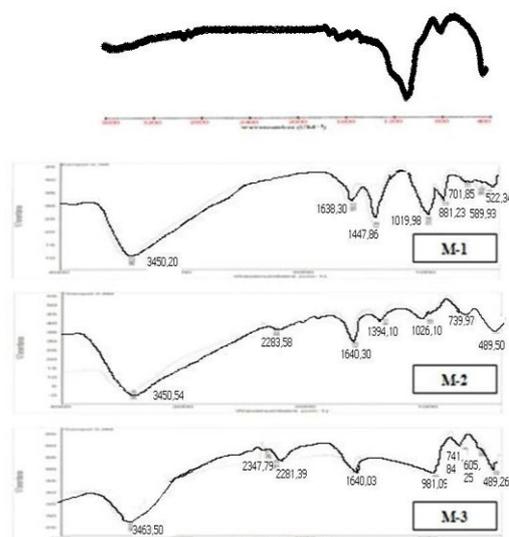
banyak. Kalor dari proses kalsinasi kemudian digunakan oleh sampel M-1 untuk menata strukturnya menjadi lebih rapat. Kerapatan struktur M-1 tersebut yang mempengaruhi sifat fisik dengan kecenderungan menurun disebabkan sampel dengan konsentrasi surfaktan lebih banyak yaitu M-2 dan M-3 mendapatkan kalor untuk menata struktur dengan waktu yang lebih sedikit sehingga strukturnya kurang rapat.

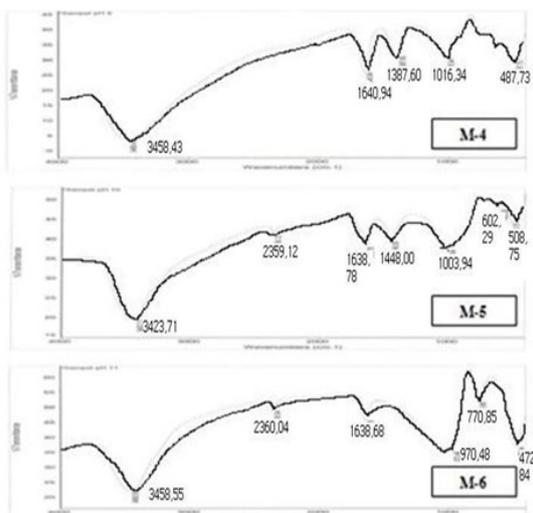
Identifikasi sampel-sampel dengan variasi pH mendapatkan hasil yang sama yaitu termasuk dalam jenis Kristobalite. Hal tersebut diduga disebabkan pH yang digunakan berada pada kisaran pH basa sehingga ion utama pembentuk kerangka silika kristalin yaitu SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup> telah dapat terbentuk. Dengan demikian berdasarkan penelitian ini variasi pH yang digunakan kurang berperan.

Perbandingan antara pola difraktogram standar dan sampel memperlihatkan adanya puncak-puncak baru dari sampel yang kurang sesuai dengan pola difraktogram standar. Puncak-puncak tersebut menandakan dalam material hasil terbentuk lebih dari 1 jenis kristal. Dengan demikian tingkat kemurnian dari sampel masih kurang baik. Tingkat kemurnian yang kurang baik tersebut juga terlihat oleh hasil karakterisasi menggunakan FTIR yang menunjukkan spektra FTIR dari sampel-sampel kurang sesuai dengan spektra FTIR standar. Hal tersebut diduga disebabkan oleh efek perlakuan-perlakuan yang diberikan selama proses sintesis yang kurang sempurna sehingga menyebabkan bidang difraksi sampel berubah dan memunculkan puncak-puncak baru.

**Karakterisasi Dengan Metode FTIR**

Karakterisasi dengan menggunakan spektrofotometer FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) pada penelitian ini dilakukan untuk memprediksi gugus fungsional yang ada dalam material hasil sintesis. Bilangan gelombang yang digunakan untuk mengukur pita-pita serapan yang terjadi antara 400-4000 cm<sup>-1</sup>. Hasil pengukuran FTIR disajikan oleh Gambar 4.





Gambar 4 Spektra FTIR Standar dan Sampel

Keterangan Gambar :

M-1 : CTAB 0,2 M dan TMACl 0,1 M

M-2 : CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M

M-3 : CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3 M

M-4 : CTAB 0,4 M;TMACl 0,2 M;pH=9

M-5 : CTAB 0,4 M;TMACl 0,2 M;pH=10

M-6 : CTAB 0,4 M;TMACl 0,2 M;pH=11

Semua spektra FTIR silikat kristalin hasil sintesis menunjukkan gugus silanol yang ditunjukkan dengan munculnya pita serapan pada daerah 3700–3200 cm<sup>-1</sup> (vibrasi ulur -OH dari Si-OH) dan pada daerah 1700–1600 cm<sup>-1</sup> (vibrasi tekuk -OH dari Si-OH). Gugus siloksan dapat terlihat dengan munculnya pita serapan pada daerah 1110–1000 (vibrasi ulur asimetri Si-O dari Si-O-Si), daerah 900–800 cm<sup>-1</sup> (vibrasi ulur simetri Si-O dari Si-O-Si) dan pada daerah sekitar 500–400 cm<sup>-1</sup> (vibrasi tekuk Si-O-Si). *Double ring* merupakan karakter yang spesifik yang ditunjukkan dengan munculnya serapan pada daerah 650–500 cm<sup>-1</sup>. *Double ring* ini merupakan jalinan eksternal antara lapisan yang satu dengan lainnya. Serapan pada daerah ini ditunjukkan oleh semua sampel hasil sintesis, walaupun pada sampel M-2 dan M-6 puncak serapannya sangat rendah.

Bilangan gelombang 1475–1300 cm<sup>-1</sup> yang merupakan vibrasi tekuk C-H pada senyawa organik masih terlihat pada sampel M-1; M-2; M-4 dan M-5. Senyawa organik tersebut diduga berasal dari asam asetat. Bilangan gelombang 800–700 cm<sup>-1</sup> merupakan vibrasi ulur Si-O dari Si-O-Si ditunjukkan oleh semua sampel yang menunjukkan bahwa telah terbentuk kerangka silika yang stabil. Bilangan gelombang 1110–1000 cm<sup>-1</sup> yang merupakan spektra paling kuat dari vibrasi ulur asimetri internal dan eksternal tetrahedral Si-O dari Si-O-Si dan merupakan ciri khas dari material silika ditunjukkan oleh semua sampel. Daftar Bilangan gelombang disajikan pada tabel 4

Tabel 4 Perbedaan posisi pita FTIR silika kristalin [13]

Bilangan Gelombang (cm <sup>-1</sup> )						Interpretasi
M-1	M-2	M-3	M-4	M-5	M-6	
-	-	-	-	-	-	Vibrasi ulur -OH dari Si-OH
-	-	-	-	-	-	Vibrasi ulur -OH dari Si-OH
3450,20	3450,54	3463,50	3458,43	3423,71	3458,55	Vibrasi ulur -OH dari Si-OH
-	-	-	-	-	-	Vibrasi ulur -C <sub>sp</sub> <sup>3</sup> -H simetri
-	-	-	-	-	-	Vibrasi ulur -C <sub>sp</sub> <sup>3</sup> -H asimetri
-	2283,58	2347,79	-	2359,12	2360,04	Vibrasi gugus karboksilat anion
1638,30	1640,30	1640,03	1640,94	1638,78	1638,68	Vibrasi tekuk -OH dari Si-OH
1447,86	1394,10	-	1387,60	1448,00	-	Vibrasi Tekuk CH <sub>2</sub>
1019,98	1026,88	-	1016,34	1003,94	1054,65	Vibrasi ulur asimetri Si-O dari Si-O-Si
-	941,26	981,09	-	-	970,48	Vibrasi ulur simetri Si-O pada Si-OH
881,23	-	-	-	881,35	802,39	Vibrasi ulur simetri Si-O dari Si-O-Si
701,85	706,94	708,33	705,71	707,03	770,85	Vibrasi ulur simetri Si-O dari Si-O-Si
589,93	-	605,25	598,20	602,29	-	Vibrasi Eksternal Double Ring
-	489,50	489,26	487,73	-	472,84	Vibrasi tekuk Si-O-Si
-	-	-	-	-	-	Vibrasi tekuk Si-O-Si
-	-	-	-	-	-	Vibrasi tekuk Si-O-Si

**Karakterisasi dengan Metode Adsorpsi Gas N<sub>2</sub> Melalui Persamaan BET**

Klasifikasi ukuran pori menurut IUPAC (Do, 1998) yaitu: mikropori (d < 20 Å), mesopori (20 < d < 500 Å) dan makropori (d > 500 Å). Klasifikasi ini dibuat berdasarkan penyerapan gas nitrogen pada titik didih normal oleh padatan berpori dengan kisaran (range) ukuran pori yang lebar. Distribusi ukuran pori merupakan aspek penting dari adsorpsi dan diperlukan dalam evaluasi media berpori serta membran. Distribusi ukuran pori berpengaruh terhadap kapasitas adsorpsi, kinetika adsorpsi dan selektivitas adsorpsi dan merupakan dasar dalam sintesis adsorben. Nilai radius pori rata-rata, luas

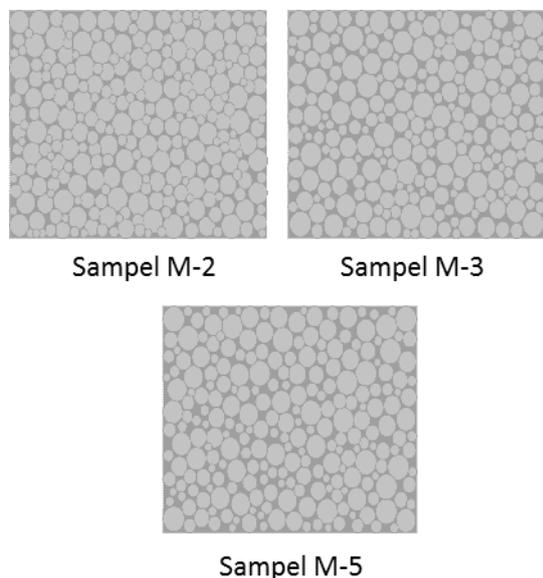
permukaan spesifik dan volume total pori dari sampel M-2, M-3 dan M-5 disajikan pada tabel 5

Tabel 5 Perbandingan sampel M-2 dan M-3

Sampel	Radius Pori Rata-Rata (Angstrom)	Luas Permukaan Spesifik (m <sup>2</sup> /g)	Volume Total Pori (cm <sup>3</sup> /g)
M-2	10,066	30,8292	15,517
M-3	9,597	40,2642	19,320

Tabel 6 Perbandingan sampel M-2 dan M-5

Sampel	Radius Pori Rata-Rata (Angstrom)	Luas Permukaan Spesifik (m <sup>2</sup> /g)	Volume Total Pori (cm <sup>3</sup> /g)
M-2	10,066	30,8292	15,517
M-5	9,500	38,7657	18,413



Data-data dari tabel menunjukkan bahwa ukuran pori pada masing-masing sampel belum sesuai dengan harapan meskipun terdapat ukuran pori > 20 Å yang masuk dalam kategori ukuran mesopori. Namun, material produk ini masih belum sempurna karena masih banyak terbentuknya material mikropori dengan ukuran < 20 Å. Radius pori rata-rata dari semua sampel juga menunjukkan ukuran pori silika kristalin hasil sintesis masuk dalam material mikropori. Berdasarkan grafik dan permodelan distribusi pori sampel memperlihatkan bahwa distribusi pori dari ketiga sampel yang diuji masih belum merata. Data grafik memperlihatkan terbentuknya beberapa puncak pada ketiga sampel yang menandakan pori-pori yang terbentuk masih belum seragam dan terlihat lebih jelas pada permodelan distribusi pori sampel. Ukuran pori yang terbentuk tidak terlalu banyak yang mendekati ukuran pori rata-rata sehingga disimpulkan distribusi pori masih kurang merata pada ketiga sampel.

Terbentuknya material mikropori diduga disebabkan oleh belum terbukanya rongga-rongga pori

secara merata. Faktor-faktor yang mempengaruhi diantaranya adalah proses kalsinasi yang belum maksimal menyebabkan surfaktan belum terdekomposisi secara sempurna. Luas permukaan material hasil akan menurun karena pori yang terbentuk akan terisi oleh senyawa-senyawa tersebut. Variasi konsentrasi pada sampel M-2 (konsentrasi CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M) dan M-3 (konsentrasi CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3M) menunjukkan penurunan ukuran pori rata-rata yang tidak signifikan tetapi terjadi kenaikan luas permukaan spesifik dan volume total pori yang signifikan. Hal tersebut menandakan M-3 merupakan material yang lebih berpori daripada sampel M-2 disebabkan dengan konsentrasi surfaktan yang lebih tinggi dapat membentuk misel surfaktan lebih banyak. Dengan demikian misel dapat mencetak pori lebih banyak sehingga meningkatkan luas permukaan spesifik dan volume total pori. Namun, kenaikan luas permukaan spesifik dan volume total pori sampel M-2 tidak diimbangi dengan pembentukan pori berukuran meso karena mayoritas pori berukuran mikro sehingga secara keseluruhan ukuran pori rata-rata akan menurun dibanding sampel M-2. Variasi pH pada sampel M-2 (pH = 11,85) dan M-5 (pH =10) juga menunjukkan penurunan ukuran pori rata-rata yang tidak signifikan tetapi terjadi kenaikan luas permukaan spesifik dan volume total pori yang signifikan. Hal tersebut menandakan material M-5 lebih berpori dibanding sampel M-2 karena luas permukaan spesifik dan volume total pori meningkat. Namun, kenaikan luas permukaan spesifik dan volume total pori sampel M-5 tidak diimbangi dengan pembentukan pori berukuran meso karena mayoritas pori berukuran mikro sehingga secara keseluruhan ukuran pori rata-rata akan menurun dibanding sampel M-2.

#### 4. Kesimpulan

1. Sintesis silika kristalin dari natrium silikat dan TEOS dengan surfaktan CTAB dan TMACl telah berhasil dilakukan dengan menghasilkan silika kristalin jenis Stishovite, Kuarsa dan Kristobalite yang belum murni
2. Kristalinitas terbaik didapatkan dari sampel dengan konsentrasi CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M dan sampel dengan pH 11, ukuran pori rata-rata terbesar didapatkan dari sampel dengan konsentrasi CTAB 0,4 M dan TMACl 0,2 M, luas permukaan spesifik dan volume total pori terbesar didapatkan dari sampel dengan konsentrasi CTAB 0,6 M dan TMACl 0,3 M
3. Variasi konsentrasi surfaktan dan pH yang digunakan dalam penelitian ini belum memberi peran yang signifikan terhadap kristalinitas, luas permukaan spesifik, volume total pori dan ukuran pori rata-rata silika kristalin.

#### 5. Daftar Pustaka

- [1] L. Ji, A. Katiyar, N.G. Pinto, M. Jaroniec, P.G. Smirnotis, Al-MCM-41 sorbents for bovine serum albumin: relation between Al content and

- performance, Microporous and Mesoporous Materials, 75 (2004) 221-229.
- [2] S. Nugandini, Sintesis Material Mesopori dari Abu Sekam Padi dengan Penambahan Sumber Silika, in: Jurusan Kimia, Universitas Diponegoro, Semarang, 2007.
- [3] M.S. Whang, Y.K. Kwon, G.-J. Kim, MCM-41 supported chiral amino alcohols as enantioselective catalysts for the reduction of ketones, Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 8 (2002) 262-267.
- [4] G. Odian, Principles of Polymerization, Wiley, 2004.
- [5] S. Hadi, Pembuatan dan Karakterisasi Zeolit A dari Sekam Padi, in: Kimia, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, 1993.
- [6] M.A. Mazak, Modified Zeolite Beta as Catalysts in Friedel-Crafts Alkylation of Resorcinol, in: Chemistry, Universiti Teknologi Malaysia, 2006.
- [7] X.S. Zhao, G. Lu, G.J. Millar, Advances in mesoporous molecular sieve MCM-41, Industrial & Engineering Chemistry Research, 35 (1996) 2075-2090.
- [8] J.D. Holmes, D.C. Steytler, G.D. Rees, B.H. Robinson, Bioconversions in a Water-in-CO<sub>2</sub> Microemulsion, Langmuir, 14 (1998) 6371-6376.
- [9] R.M. Barrer, Zeolites and their synthesis, Zeolites, 1 (1981) 130-140.
- [10] H. Hamdan, Introduction to Zeolites: Synthesis, Characterization, and Modification, Universiti Teknologi Malaysia, Kuala Lumpur, (1992).
- [11] Warsito, Pengaruh Penambahan Surfaktan Cetyltrimethylammonium Bromide (N-CTMABr) pada Sintesis Zeolit-Y, in: Jurusan Kimia, Universitas Diponegoro, Semarang, 2008.
- [12] C. Enterprise, E. Global, I. Edition, E. Analytical, Joint Committee on Powder Diffraction Standards, Anal. Chem, 45 (1973) 944A-944A.
- [13] R.M. Silverstein, F.X. Webster, D.J. Kiemle, D.L. Bryce, Spectrometric Identification of Organic Compounds, Wiley, 1991.