

EFFECT OF ACID CONCENTRATION ON CHARACTERS OF SILICA GEL SYNTHESIZED FROM SODIUM SILICATE

Pengaruh Konsentrasi Asam Terhadap Karakter Silika Gel Hasil Sintesis dari Natrium Silikat

Nuryono * and Narsito

Chemistry Department, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Gadjah Mada University, Yogyakarta

Received 7 October 2004; Accepted 21 October 2004

ABSTRACT

In this research, synthesis and characterization of silica gel from sodium silicate through sol-gel process using H_2SO_4 , HCl, and citric acid have been investigated. Synthesis was carried out by mixing and stirring 20 mL of H_2SO_4 , HCl or citric acid at certain concentration with 50 mL of sodium silicate solution (Na_2O 0.17 M and SiO_2 0.61 M) for one hour and let to form gel. The gel was washed with distilled water, and dried in an oven at 100 °C. Characterization of silica gel was carried out by determination of acidity, water adsorption capacity, and water content. Identification of functional group and structure were identified using x-ray diffractometer (XRD) and infrared (IR) spectrophotometer, respectively.

Results showed that at a range of investigated concentration (0.6 – 3.0 M) the increase of concentration, formation of gel with H_2SO_4 tended to be faster, but with HCl and citric acid to be slower. The increase of acid concentration caused water content, water adsorption capacity, and acidity of the silica gel resulted with HCl and citric acid tended to be increased, increased, and increased, but with H_2SO_4 to be decreased, increased, and decreased, respectively. Based on the IR spectra and XRD data, it could concluded that the synthetic silica gels contained silanol (Si-OH) and siloxane (Si-O-Si) and were amorphous, showing similar pattern to kieselgel G 60 produced by Merck.

Keywords: silica gel, adsorption capacity, sodium silicate, acidity

PENDAHULUAN

Silika gel merupakan salah satu material berbasis silika yang mempunyai kegunaan secara luas seperti pada industri farmasi, keramik, cat, dan aplikasi khusus pada bidang kimia. Silika gel adalah polimer asam silikat dengan berat molekul besar dan banyak menyerap air sehingga berbentuk padat kenyal. Definisi lain dari silika gel adalah silika amorf yang terdiri atas globula-globula SiO_4 tetrahedral yang tidak teratur dan beragregat membentuk kerangka tiga dimensi [1].

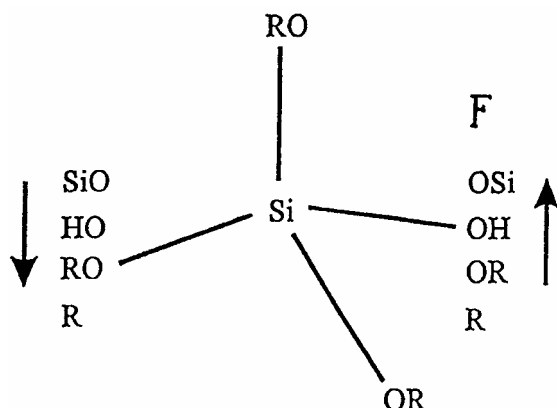
Saat ini pembuatan silika gel dilakukan melalui proses sol-gel karena berlangsung pada temperatur rendah. Melalui proses ini, bahan oksida anorganik dengan sifat yang dikehendaki seperti kekerasan, ketahanan termal, transparansi optik, porositas, dapat dilakukan pada temperatur rendah [2]. Pembuatan silika gel melalui proses sol-gel melibatkan proses hidrolisis dan kondensasi dari turunan alkoxi silikon seperti tetraetil ortosilikat

(TEOS) dan tetrametil ortosilikat (TMOS). Dilaporkan oleh Nakanishi *et al.* [3] bahwa TMOS mengalami hidrolisis lebih cepat daripada TEOS. Wagh *et al.* [4] membandingkan gel yang diperoleh dari tiga jenis bahan berbeda, yaitu TEOS, TMOS, dan PEDS (polietoksidisiloksan) dan menyimpulkan bahwa TMOS menghasilkan pori kecil dan seragam dan luas permukaan lebih tinggi daripada TEOS. Penambahan metiltrimetoksisilan ke dalam TMOS atau dimetildietoksisilan pada TEOS meningkatkan hidrofobisitas [5] dan menggeser distribusi ukuran pori ke jejari pori lebih besar [6]. Gugus fungsional pada atom silikon yang mempengaruhi sifat hidrofobisitas padatan adalah atom yang memiliki elektronegativitas tinggi seperti F (Gambar 1).

Untuk mendapatkan silika gel dengan berbagai sifat, banyak teknik sintesis telah dikembangkan dengan menambahkan surfaktan atau templat. Pang *et al.* [8] telah melakukan sintesis silika mesopori dari TEOS yang terhidrolisis terkatalis asam klorida dan untuk kondensasi digunakan asam sitrat, maleat, tartrat dan laktat

* Corresponding author.

Email address : nuryono00000@yahoo.com



Gambar 1 Karakteristik asektor donor alkoksilasilan. Anak panah kiri: kenaikan sifat donor elektron; anak panah kanan: kenaikan sifat asektor elektron [7]

yang sekaligus sebagai templat. Untuk penghilangan templat dilakukan ekstraksi dengan etanol. Hasil penelitian Pang et al. menunjukkan bahwa diameter dan volume pori secara umum meningkat dengan peningkatan konsentrasi templat. Sifat mesopori hanya berubah sedikit pada kalsinasi 773 K selama 6 jam. Hukkamaki dan Pakkanen [9] mengkaji penggunaan templat berujung gugus amin untuk pembuatan silika amorf. Hasil kajian ini menunjukkan bahwa partikel yang didapatkan berada pada daerah mikro dan mesopori.

Di samping alkoksi silikon, pembuatan silika dapat dilakukan dengan menggunakan larutan silikat. Dengan bahan ini tidak diperlukan proses hidrolisis. Sierra *et al.* [10] melaporkan pembuatan silika mesopori dari larutan natrium silikat melalui pengontrolan morfologi dengan surfaktan non-ionik Triton X100 pada pH berkisar antara 2 dan 6. Distribusi ukuran partikel seragam pada pH tinggi dan pada waktu reaksi lama (beberapa hari). Bentuk sferoidal cenderung terjadi pada pH rendah dan temperatur tinggi, dan bentuk polihedral tampak pada pH tinggi. Kelakuan itu dapat dikaitkan dengan laju polikondensasi asam silikat, umur dan ketidakteraturan misel serta interaksi misel-asam silikat. Kajian sifat pori silika gel yang disintesis dari natrium silikat tanpa templat melalui pembekuan hidrogel silika pada kisaran -30 dan -196 °C dilaporkan oleh Mukai *et al.* [11]. Dari kajian itu disimpulkan bahwa sifat pori dapat dikontrol dengan mengubah pH larutan silikat dan waktu yang diberikan untuk *aging* setelah proses gelasi, sedangkan morfologi gel dipengaruhi oleh konsentrasi SiO_2 dan temperatur pembekuan. Dalam penelitian ini dilakukan pembuatan silika gel dari natrium silikat tanpa templat dengan

menggunakan tiga jenis asam (asam sitrat, H_2SO_4 , dan HCl) pada berbagai konsentrasi.

Selain porositas dan morfologi, sifat silika gel yang juga penting adalah keasaman pada permukaan. Partikel silika dapat dipandang sebagai padatan asam yang memiliki gugus hidrosil di permukaan [12]. Kekuatan asam ini dapat digunakan sebagai ukuran reaktivitas kimianya. Dalam artikel ini dilaporkan kajian pengaruh jenis dan konsentrasi asam terhadap keasaman silika gel hasil sintesis dari natrium silikat. Di samping itu, mekanisme pada berbagai kondisi kondensasi silikat juga didiskusikan.

METODE PENELITIAN

Bahan penelitian

Bahan kimia yang digunakan dalam penelitian ini meliputi larutan natrium silikat dengan kadar Na_2O 8 %, SiO_2 27 % dengan massa jenis 1,346 g/mL, H_2SO_4 96-98 %, asam sitrat ($\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$), HCl 37%, larutan NH_3 25 %, silika gel jenis Kiesel Gel 60 dibeli dari Merck (Damstaat, Jerman) tanpa perlakuan. Di samping itu, akuades dibeli dari Laboratorium Kimia Dasar, Jurusan Kimia, UGM dan kertas saring Whatman 42 dan indikator pH juga dari Merck.

Alat penelitian

Peralatan yang diperlukan meliputi alat pengering, Oven (Fischer 655P, USA), Tanur (Carbolite S302RR, Inggris), timbangan analitik listrik (Mettler AS 200, Jerman), Difraktometer sinar-X (Shimadzu XRD 6000, Jepang), dan Spektrofotometer inframerah (Shimadzu FTIR-8201 PC, Jepang), serta beberapa alat pendukung lain seperti plat panas-pengaduk (*Stirring-hot plate*), ayakan 200 mesh, desikator vakum, cawan porselen, dan alat pendukung seperti botol polietilen dan peralatan gelas.

Prosedur Kerja

Pembuatan silika gel dari larutan natrium silikat murni

Sebanyak 5 mL larutan natrium silikat yang mengandung SiO_2 (6,1 M) dan Na_2O (1,7 M) diencerkan 10 kali dalam labu ukur 50 mL. Dua puluh lima mililiter larutan natrium silikat encer ditempatkan dalam wadah plastik bening, diaduk dengan menggunakan pengaduk magnet (*magnetic stirrer*) lalu ditambah asam sulfat dengan konsentrasi yang berbeda-beda, yaitu 0,6 M; 0,8 M; 1,0 M; 1,5 M dan 3,0 M sebanyak 10 mL secara perlahan-lahan sampai larutan tercampur sempurna, dan kemudian dibiarkan sehingga

terbentuk gel. Gel yang terbentuk dicuci dengan akuades sampai netral lalu dikeringkan di dalam oven dengan suhu 100 °C. Gel kering digerus dan disaring dengan ayakan 200 mesh, lalu dicuci dengan akuades sampai bebas asam. Pembuatan gel diulangi dengan menggunakan asam klorida dan asam sitrat.

Karakterisasi silika gel

Silika gel hasil sintesis dikarakterisasi keberadaan gugus fungsionalnya dengan FTIR, kekristalannya dengan XRD, keasaman, kapasitas adsorpsi air dan kadar air totalnya. Penentuan keasaman dilakukan berdasarkan adsorpsi amoniak. Sampel kering dimasukkan ke dalam desikator vakum dan dialiri gas amoniak, dibiarkan semalam. Selisih berat sesudah dan sebelum dialiri gas amoniak merupakan ukuran keasaman sampel.

Kapasitas adsorpsi air ditentukan berdasarkan selisih berat antara sampel yang telah dijenuhkan dengan uap air dengan sampel yang telah dipanaskan pada temperatur 100 °C selama 4 jam. Kadar air total ditentukan dari selisih berat sampel kering dengan berat sampel setelah dipanaskan pada 600 °C selama 2 jam.

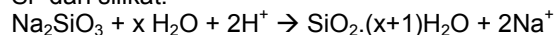
HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembentukan silika gel

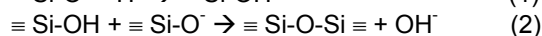
Pembentukan silika gel dari larutan natrium silikat diperoleh melalui penambahan larutan natrium silikat dengan larutan asam, karena terjadi reaksi kondensasi dari silikat. Hasil pembuatan gel dengan tiga jenis asam disajikan dalam Tabel 1.

Dari Tabel 1 dapat dilihat bahwa pengaruh konsentrasi asam yang digunakan pada kisaran 0,4 – 3,0 M terhadap waktu pembentukan silika gel

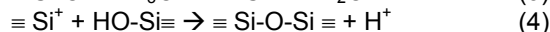
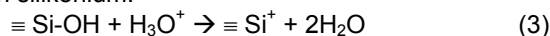
bergantung pada jenis asam. Penggunaan H₂SO₄ pada konsentrasi semakin tinggi, waktu pembentukan gel semakin cepat, sedangkan untuk HCl dan C₆H₈O₇ semakin tinggi konsentrasi asam semakin lama waktu yang diperlukan untuk pembentukan gel. Proses pembentukan gel terjadi melalui reaksi pembentukan ikatan siloksan, -Si-O-Si- dari silikat.



Berdasarkan reaksi di atas nampak bahwa pembentukan gel bergantung pada pH atau konsentrasi proton dalam larutan dan tidak bergantung pada jenis asam. Pada penambahan asam menyebabkan semakin tinggi konsentrasi proton (H⁺) dalam larutan natrium silikat dan sebagian gugus siloksi (Si-O⁻) membentuk gugus silanol (Si-OH). Pada kondisi ini terjadi proses kondensasi melalui mekanisme nukleofil seperti reaksi berikut ini.



Pada penambahan asam secara berlebihan di mana semua gugus silikat terprotonasi sempurna sehingga terbentuk asam silikat bebas, pembentukan silika gel terjadi melalui pembentukan ion silikonium.



Berdasarkan dua mekanisme pembentukan gel di atas, fenomena pengaruh konsentrasi asam terhadap waktu pembentukan gel dapat dijelaskan. Pada kondisi basa, semua silika dalam larutan berada sebagai ion silikat, SiO₃⁻, dan atom Si terlibat dalam delokalisasi elektron dengan atom O sehingga cukup stabil dan sukar mengalami pembentukan ikatan siloksan.

Tabel 1 Berat dan waktu pembentukan gel dengan beberapa jenis asam

Jenis Asam	Konsentrasi Asam (M)	Kode silika gel	Hasil silika gel (gram)	Waktu pembentukan silika gel (hari)	pH setelah terbentuk gel ^{*)}
H ₂ SO ₄	0,6	GSu-06	1.5642	12	1
	0,8	GSu-08	1.9096	11	1
	1,0	GSu-10	2.0503	9	<1
	1,5	GSu-15	1.9296	6	<1
	3,0	GSu-30	1.9687	4	<1
HCl	0,6	GKI-06	2,4147	1	10
	0,8	GKI-08	2,2932	7	10
	1,0	GKI-10	2,0625	10	1
	1,5	GKI-15	2,2060	12	1
	2,0	GKI-20	2,6456	16	1
C ₆ H ₈ O ₇	0,4	GSi-04	2,0610	0,04 (1 jam)	5
	0,6	GSi-06	2,3440	0,17 (4 jam)	5
	1,0	GSi-10	2,2820	1	4
	1,5	GSi-15	2,5010	3	3
	2,0	GSi-20	2,2830	5	2

^{*)} Pengukuran pH dilakukan secara kasar dengan kertas pH

Pada penambahan asam, sebagian gugus $-\text{Si}-\text{O}^-$ terprotonasi dan delokalisasi elektron terganggu sehingga atom Si dapat terserang oleh atom O dari spesies $-\text{Si}-\text{O}^-$ lain dan terjadi reaksi (2). Apabila penambahan asam dilanjutkan maka terjadi peningkatan konsentrasi $-\text{Si}-\text{OH}$ dan reaksi tercepat berlangsung apabila tercapai konsentrasi $-\text{SiOH}$ dan $-\text{Si}-\text{O}^-$ dalam jumlah sama.

Apabila penambahan asam berlanjut maka konsentrasi $-\text{SiO}^-$ berkurang dan $-\text{SiOH}$ bertambah dan berakibat reaksi berlangsung lambat. Reaksi paling lambat tercapai apabila semua gugus $-\text{SiO}^-$ terprotonasi karena tidak ada atom O yang cukup efektif untuk menyerang atom Si. Apabila penambahan asam berlanjut terus maka gugus silanol mengalami protonasi dan diikuti oleh pembentukan ion silikonium $-\text{Si}^+$ yang sangat efektif untuk diserang oleh atom O dari gugus silanol dan reaksi (4) terjadi. Pada keadaan ini peningkatan konsentrasi asam dapat meningkatkan laju pembentukan gel.

Dari Tabel 1 terlihat bahwa untuk penambahan H_2SO_4 , semakin tinggi konsentrasi semakin lama waktu yang diperlukan untuk pembentukan gel. Karena H_2SO_4 sebagai asam kuat dibasis, dengan penambahan 0,6 M telah mampu mengubah silikat menjadi asam silikat (pH telah mencapai 1) sehingga konsentrasi $-\text{SiO}^-$ rendah dan pembentukan siloksan lambat. Peningkatan konsentrasi asam berakibat waktu pembentukan semakin cepat karena terjadi protonasi gugus silanol yang berakibat terbentuknya ion silikonium dan pembentukan ikatan siloksan dapat terjadi melalui Reaksi (4).

Asam klorida memiliki pengaruh yang berbeda dengan H_2SO_4 . Semakin tinggi konsentrasi yang ditambahkan semakin lambat pembentukan gel. Meskipun asam kuat, HCl merupakan asam monobasis sehingga pada konsentrasi yang sama jumlah proton yang dibebaskan dalam larutan separoh dari H_2SO_4 . Dengan penambahan HCl 0,6 M, silika berada sebagai campuran ion $-\text{SiO}^-$ dan silanol $-\text{SiOH}$ yang mendorong terjadinya ikatan siloksan melalui reaksi (2). Jika konsentrasi meningkat, $-\text{SiO}^-$ berkurang dan $-\text{SiOH}$ bertambah dan perbandingan konsentrasi $-\text{SiO}^-/\text{SiOH}$ kurang dari 1 dan Reaksi (2) berlangsung lambat.

Asam sitrat memiliki pengaruh yang sama dengan asam klorida, tetapi pada konsentrasi yang sama waktu yang diperlukan untuk pembentukan gel lebih cepat. Asam sitrat merupakan asam lemah tribasis yang jika ditambahkan dalam larutan natrium silikat dapat menghasilkan larutan bufer asam lemah dan garamnya dan pada peningkatan konsentrasi asam pH menurun secara perlahan-lahan. Penambahan 0,4 M asam sitrat membuat pH larutan

sama dengan 5 dan pembentukan berlangsung sangat cepat. Pada kondisi itu spesies $-\text{Si}-\text{O}^-$ dan $-\text{Si}-\text{OH}$ dominan dalam larutan sehingga reaksi (2) berlangsung cepat. Peningkatan konsentrasi asam mengakibatkan penurunan pH atau penurunan konsentrasi $-\text{Si}-\text{O}^-$ dan berakibat pembentukan gel berlangsung lambat.

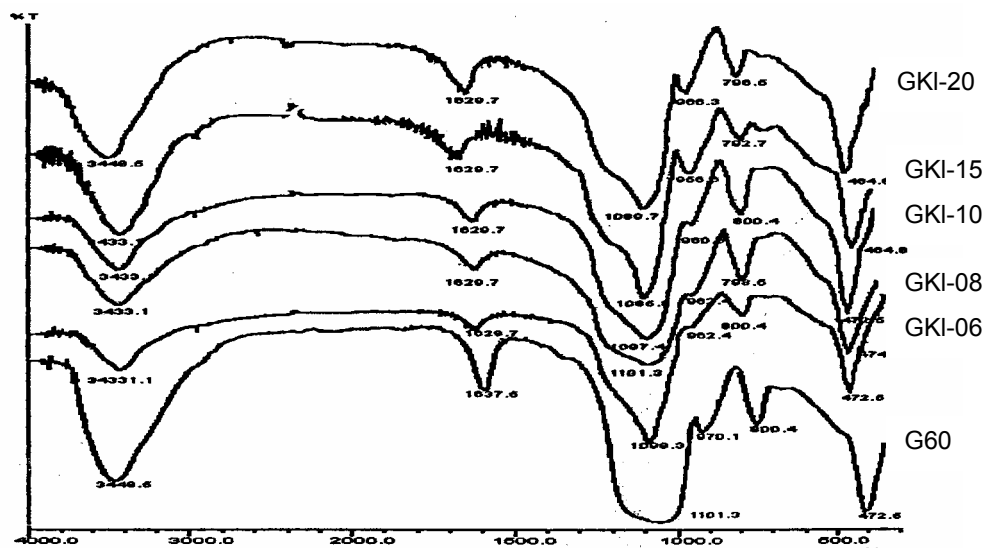
Pengaruh konsentrasi asam terhadap berat hasil silika gel nampak tidak signifikan, sedangkan berdasarkan jenis asam tampak bahwa dengan menggunakan asam sulfat memperoleh silika gel lebih sedikit dibanding dengan HCl dan asam sitrat. Hal itu diduga pembentukan silika gel dengan penambahan H_2SO_4 berlangsung melalui Reaksi (4), sehingga diduga polimer gel yang terbentuk mengandung banyak gugus silanol dan sebagian atom Si dalam larutan tidak membentuk ikatan siloksan.

Karakterisasi silika gel

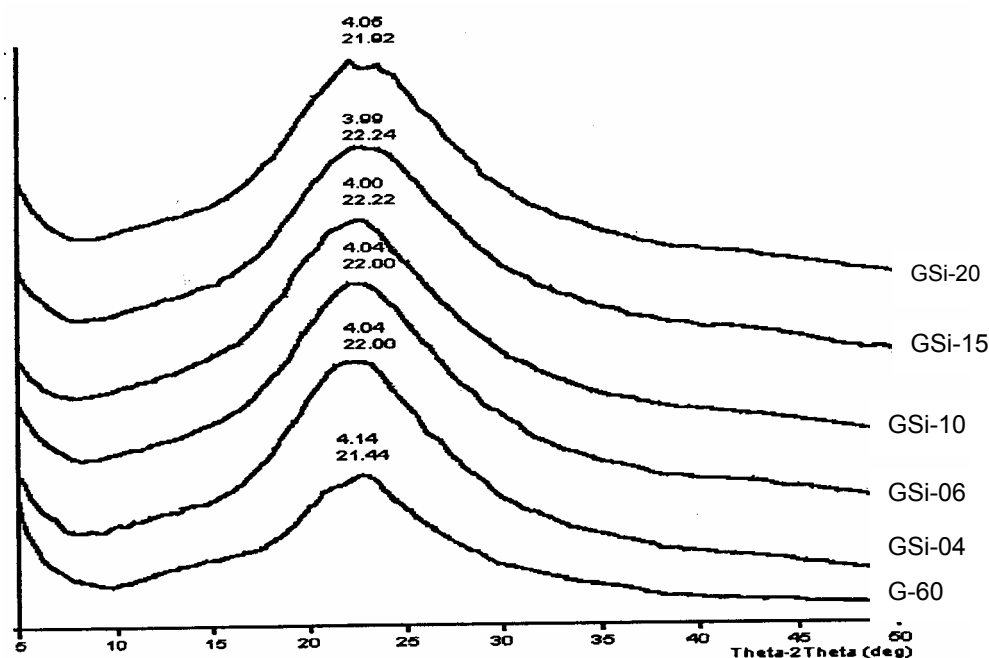
Karakterisasi silika gel dilakukan dengan identifikasi gugus fungsional berdasarkan data spektra serapan inframerah dan sifat kekristalan berdasarkan data difraktogram sinar-X. Hasil pengukuran spektra inframerah silika gel sintetik dengan asam klorida dan tipe G 60 disajikan dalam Gambar 2.

Data spektra inframerah Gambar 2 menunjukkan bahwa semua silika gel memberikan serapan karakteristik yang mirip. Pita frekuensi $1101,3 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi ulur asimetri Si-O dari Si-O-Si dengan adanya bahu pada 1200 cm^{-1} yang menyatakan karakter vibrasi SiO_4 dan menunjukkan berlangsungnya polimerisasi. Pita serapan karakteristik Si-O juga muncul pada daerah frekuensi $800,4 \text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan adanya vibrasi ulur asimetri Si-O pada ikatan Si-O-Si, sedangkan pita serapan yang muncul pada frekuensi $970,1 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi ulur Si-O pada Si-OH. Pita lebar pada frekuensi $3448,5 \text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi gugus $-\text{OH}$ (hidroksil) yang dapat berasal dari Si-OH atau air yang terhidrasi [13]. Perbedaan terlihat pada intensitas serapan di sekitar $3448,5 \text{ cm}^{-1}$. Semakin tinggi konsentrasi asam yang ditambahkan, semakin besar intensitas serapan yang mengindikasikan semakin banyak gugus $-\text{OH}$ yang ada. Hal ini cukup beralasan karena pada saat terbentuknya gel, penggunaan konsentrasi asam yang relatif tinggi berakibat gugus $-\text{Si}-\text{O}^-$ yang terprotonasi juga semakin banyak dan akan terbawa sampai gel dihasilkan.

Di samping itu, pengaruh jenis asam terhadap keberadaan gugus fungsional silika gel juga telah dievaluasi. Dalam evaluasi ini HCl diwakili oleh 0,8 M, H_2SO_4 diwakili oleh 1,5 M dan asam sitrat 2,0 M.



Gambar 2 Spektra inframerah untuk silika gel hasil sintetik dengan berbagai konsentrasi HCl dan Kieselgel G 60.



Gambar 3 Difraktogram sinar-X silika gel sintesis dengan asam sitrat pada berbagai konsentrasi

Pemilihan ini didasarkan pada kesamaan waktu yang diperlukan untuk pembentukan gel (berkisar antara 4 - 6 hari). Hasil (gambar tidak disajikan) menunjukkan bahwa tidak terdapat perbedaan serapan karakteristik untuk silika gel. Sebagaimana pada pengaruh konsentrasi, pengaruh jenis asam juga terlihat pada intensitas

serapan yang karakteristik untuk gugus -OH. Makin tinggi keberadaan spesies -Si-OH pada larutan pembentuk gel maka semakin tinggi pula gugus silanol dalam gel.

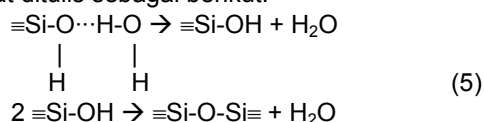
Selain identifikasi gugus fungsional, karakterisasi silika gel dilakukan dengan uji kekristalan dengan difraksi sinar-X. Difraktogram

beberapa silika gel disajikan dalam Gambar 3. Dari gambar itu terlihat bahwa hasil analisis silika gel dari natrium silikat murni dengan variasi konsentrasi asam sitrat memberikan 1 puncak yang melebar pada 2θ sekitar 22° ($2d = 4,00$) dan menurut Kalapathy et al. [14] bersifat amorf. Berdasarkan difraktogram itu, struktur silika gel sintetik mirip dengan silika gel Kiesel Gel G 60 produksi Merck. Penggunaan asam yang berbeda tidak mempengaruhi struktur gel yang dihasilkan.

Kadar air, kapasitas adsorpsi air dan keasamaan

Keberadaan gugus fungsional terutama silanol dan stuktur silika gel dapat mempengaruhi kemampuan silika gel dalam berfungsi sebagai adsorben. Dalam tulisan ini, juga dievaluasi pengaruh penggunaan jenis asam dan konsentrasi terhadap keberadaan gugus silanol (dinyatakan sebagai kadar air), kemampuan mengadsorpsi air dan keasamaan. Berdasarkan kadar air dapat ditentukan nilai x pada rumus kimia silika gel secara umum $\text{SiO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$. Secara lengkap hasil penentuan ketiga sifat itu disajikan dalam Tabel 2.

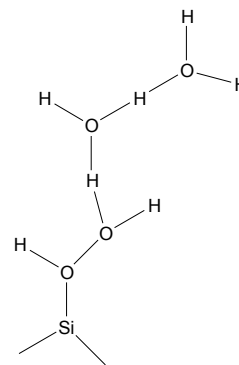
Kadar air total dalam hal ini didefinisikan sebagai banyaknya air yang dilepaskan oleh silika gel kering akibat pemanasan pada 600°C selama 2 jam. Pelepasan molekul air dapat berasal dari pemutusan ikatan hidrogen antara molekul air dengan gugus silanol dan hasil kondensasi dari gugus silanol. Dua reaksi pelepasan air di atas dapat ditulis sebagai berikut:



Berdasarkan persamaan reaksi (5) nampak bahwa banyaknya molekul air yang dilepaskan sangat bergantung pada jumlah gugus silanol yang ada dan molekul air yang terikat.

Scott [15] melaporkan bahwa data analisis gravimetri termal (TGA) silika gel menunjukkan bahwa pada pemanasan dari 120°C sampai 700°C terjadi penurunan berat dua kali, yaitu pada temperatur $120 - 580^\circ\text{C}$ dan $580 - 700^\circ\text{C}$. Penurunan berat tersebut dapat dijelaskan melalui teori yang menyebutkan bahwa dalam silika gel terdapat tiga lapisan molekul air (Gambar 4).

Dari data itu diramalkan bahwa penurunan berat pada temperatur $120 - 580^\circ\text{C}$ akibat terjadinya proses pemutusan ikatan hidrogen pada lapis pertama, sedangkan pada temperatur di atas 580°C berlangsung kondensasi gugus silanol. Oleh karena itu, dalam penelitian ini pemanasan dilakukan pada temperatur 600°C selama 2 jam diharapkan semua gugus $-\text{OH}$ yang terikat sudah terkondensasi.



Gambar 4 Lapisan molekul air dalam silika gel

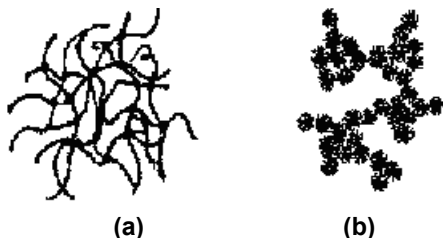
Tabel 2 Data kadar air, kapasitas adsorpsi air dan keasamaan silika gel

Kode silika gel	Kadar air (mmol/g)	Nilai x pada $\text{SiO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$	Kapasitas adsorpsi air (g $\text{H}_2\text{O}/\text{g}$)	Keasamaan (mmol NH_3/g)
GSu-06	4,2150	0,273	0,0249	0,4906
GSu-08	2,8770	0,182	0,0701	0,3014
GSu-10	1,6190	0,110	0,0790	0,2782
GSu-15	0,9470	0,080	0,1011	0,2447
GSu-30	0,4650	0,062	0,1277	0,1993
GKI-06	4,6520	0,304	0,0505	1,4570
GKI-08	4,6580	0,305	0,0608	1,5770
GKI-10	4,6640	0,305	0,0738	1,8600
GKI-15	5,2850	0,345	0,1845	2,0630
GKI-20	6,1960	0,418	0,3339	2,3370
GSi-04	2,1200	0,132	0,2850	1,9630
GSi-06	2,5810	0,163	0,2920	4,045
GSi-10	2,9990	0,191	0,2980	4,2130
GSi-15	4,1810	0,271	0,3340	4,7340
GSi-20	4,7250	0,309	0,3800	6,096
Kieselgel G60	2,0340	0,127	0,0113	0,6633

Dari Tabel 2 terlihat bahwa pengaruh konsentrasi asam terhadap kadar air bergantung jenis asam yang digunakan. Untuk asam sitrat dan HCl peningkatan konsentrasi mengakibatkan peningkatan kadar air. Hal ini cukup beralasan karena semakin tinggi konsentrasi yang ditambahkan berarti semakin banyak proton yang berada dalam larutan dan meningkatkan jumlah gugus silanol. Sebagaimana disebutkan di muka bahwa kondensasi dengan penambahan HCl dan asam sitrat berlangsung melalui mekanisme terkatalisis basa dan menurut Brinker and Scherer [2] mekanisme itu menghasilkan gel berbentuk kluster (Gambar 5a) sehingga selain mengandung banyak gugus silanol juga mampu menjebak banyak molekul air sebagai hidrat. Berbeda dengan kedua jenis asam di atas, peningkatan konsentrasi H_2SO_4 mengakibatkan penurunan kadar air. Penjelasan fenomena ini belum diketahui, tetapi diduga akibat mekanisme pembentukan gel yang berbeda dengan dua jenis asam yang lain. Pembentukan silika gel menggunakan H_2SO_4 berlangsung melalui mekanisme terkatalisis asam dan menghasilkan gel berupa polimer bercabang acak dan linear (Gambar 5b). Oleh karena itu, meskipun gugus silanol meningkat akibat penggunaan asam, jumlah molekul yang berfungsi sebagai hidrat menurun tajam.

Kapasitas air didefinisikan sebagai kemampuan maksimal silika gel dalam mengadsorpsi air dari uap air jenuh. Penentuan kapasitas adsorpsi air dilakukan dengan cara pemanasan pada temperatur $100\text{ }^\circ\text{C}$ selama 4 jam terhadap silika gel yang telah dijenuhkan dengan uap air. Kapasitas air merupakan selisih berat sebelum dan setelah pemanasan dihitung per 1 g silika gel kering.

Dari Tabel 2 terlihat bahwa dengan ketiga jenis asam di atas, peningkatan konsentrasi menyebabkan kapasitas adsorpsi air naik. Kapasitas air bergantung pada banyaknya gugus silanol yang terdapat pada permukaan. Oleh karena itu, apabila kadar air merupakan ukuran banyaknya gugus silanol maka kapasitas air diharapkan sebanding dengan kadar air. Data menunjukkan bahwa untuk H_2SO_4 memberikan hasil yang tidak sesuai. Hal ini



Gambar 5 Representasi skematik silika gel yang disintesis dengan katalis asam (a) dan basa (b).

diduga karena kadar air silika gel dari H_2SO_4 yang berasal dari air hidrat lebih dominan dari pada yang dari gugus silanol. Sifat adsorpsi silika gel ditentukan oleh orientasi dari ujung tempat gugus hidroksil berkombinasi. Ketidakteraturan susunan permukaan SiO_4 tetrahedral ini menyebabkan jumlah distribusinya per unit area bukan menjadi ukuran kemampuan adsorpsi silika gel walaupun gugus silanol dan siloksan terdapat pada permukaan gel. Kemampuan adsorpsi silika gel terhadap air ternyata tidak sebanding dengan jumlah gugus silanol dan siloksan yang ada di permukaan silika gel, namun tergantung pada distribusi gugus OH per unit area adsorben [1].

Dari Tabel 2 terlihat semakin besar konsentrasi asam klorida yang ditambahkan, kapasitas adsorpsi air per 1 g silika gel hasil sintesis semakin tinggi. Hal ini berkaitan dengan bahasan sebelumnya yang menjelaskan bahwa jika kondisi pembentukan silika gel semakin bersifat asam maka gugus silanol yang dihasilkan semakin banyak. Silika gel hasil sintesis dengan penambahan konsentrasi asam klorida yang besar akan mengandung gugus silanol yang banyak dan kemungkinan distribusi gugus silanol per unit area pada silika gel tersebut lebih luas. Oleh sebab itu penambahan konsentrasi asam klorida yang besar maka kapasitas adsorpsi air dari silika gel akan semakin tinggi.

KESIMPULAN

Hasil penelitian menunjukkan bahwa karakter silika gel yang dihasilkan melalui proses sol-gel dapat dikontrol melalui penggunaan jenis asam dan konsentrasi yang berbeda. Pada kisaran konsentrasi yang diteliti ($0,6 - 3,0\text{ M}$) semakin tinggi konsentrasi asam, pembentukan silika gel semakin lambat untuk HCl dan asam sitrat, tetapi semakin cepat untuk H_2SO_4 . Peningkatan konsentrasi mengakibatkan silika gel yang dihasilkan dengan HCl dan asam sitrat memiliki kadar air, kapasitas adsorpsi air dan keasaman cenderung berturut-turut naik, naik, dan naik, sedangkan dengan H_2SO_4 cenderung turun, naik dan turun. Berdasarkan data spektra inframerah dan difraktogram sinar-X, dapat disimpulkan bahwa silika gel sintetik memiliki gugus silanol dan siloksan, berstruktur amorf, dan menunjukkan pola yang mirip dengan silika gel (*Kieselgel*) G 60 yang diproduksi oleh Merck.

UCAPAN TERIMA KASIH

Peneliti mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi Republik Indonesia yang telah mendanai penelitian ini melalui program Penelitian Hibah Bersaing XI tahun anggaran 2002/2003, dan kepada Yulia

Purwaningsih, Nunik Nurwijayanti dan Siti Robiah yang telah membantu dalam pengumpulan data.

DAFTAR PUSTAKA

1. Oscik, J., 1982, *Adsorption*, John Wiley & Sons Inc., Chichester.
2. C.J. Brinker and Scherer, G.W., 1990, *Sol-Gel Science: The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing*, Academic Press Inc., New York.
3. Nakanishi, K., Minakuchi, H., Soga, N., and Tanaka, N., 1997, *J. Sol-Gel Sci. Technol.* 8, 547
4. Wagh, P.B., Begag, R., Pajonk, G.M., Venkateswara, A., and Haranath, D., 1999, *Mater. Chem. Phys.*, 57, 214
5. Cao, B. and Zhu, C., 1999, *J. Non-Cryst. Solids*, 246, 34
6. Venkateswara, A., and Haranath, D., 1999, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 30, 267
7. Siouffi, A.M., 2003, Silica Gel-Based Monoliths Prepared by the Sol-Gel Method: Facts and Figures, *J. Chromatogr. A.*, 1000, 801-818
8. Pang, J.B., Qiu, K.Y. and Wei, Y., 2001, *J. Non-Cryst. Solids*, 283, 101-108
9. Hukkamaeki, J., and Pakkanen, T.T., 2003, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 65, 189-196
10. Sierra, L., Lopez, B., and Guth, J.L. 2000, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 30, 519-527
11. Mukai, S.R., Nishihara, H. and Tamon, H. 2003, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 65, 43-51
12. Tsyganenko, A.A., Storozheva, E.N., Manoilova, E.N., Lesage, T., Daturi, M., and Lavalley, J.C., 2000, *Catal. Letters*, 70, 159-163
13. Silverstein, R.M., Bassler, G.C., and Morrill, T.C., 1981, *Spectrometric Identification of Organic Compounds*, 4th edition, John Wiley and Sons, New York
14. Kalapathy, U., Proctor, A., and Shultz, J., 2000, *Bioresource Technology*, 73, 257-262
15. Schott, R.P.W., 1993, *Silica Gel and Bonded Phases*, John Wiley & Sons Ltd., Chichester.