

**PEMBUATAN KOMPOSIT SILIKA-TITANIA
KARET ALAM TEREPOKSIDA -50 (ENR-50)
MELALUI PROSES SOL-GEL**

Novesar Jamarun, Ismail Abd Rahman dan W. A. Kamil

*Pusat Pengajian Sains Kimia, Universiti Sains Malaysia
11800, USM, Penang*

ABSTRAK

Suatu jenis komposit baru organik-anorganik telah disediakan melalui proses sol-gel. Senyawa organik yang digunakan yaitu karet alam terepoksida-50 (ENR-50), sedangkan senyawa anorganik adalah silika dan titania yang dihasilkan dari hidrolisis dan kondensasi logam alkoksida. Sebagai precursor digunakan tetraetoksitortosilane (TEOS), dan tetrabutylortotitanat (TiBT). Komposit silika-titania-ENR-50 yang mengandung ENR relatif rendah diperoleh transparan dan kaku, tetapi dengan kandungan ENR yang relatif lebih tinggi diperoleh komposit fleksibel, transparan dan sedikit berwarna. Analisis UV-Vis menunjukkan bahwa komposit yang dihasilkan adalah transparan pada daerah sinar tampak, sedangkan pada daerah sinar lembayung adalah opak. Penyerapan UV-Vis mulai dari 200 nm sampai 370 nm. Hasil analisis termogravimetri (TGA) memperlihatkan bahwa dekomposisi mulai pada temperatur 425 °C sampai 465 °C. Analisis FT-IR memberikan penyerapan pada puncak yaitu : 3441 cm^{-1} merupakan puncak OH, 2974 cm^{-1} puncak C-C dan C-H, 2945 cm^{-1} puncak Si-OH, 1464 cm^{-1} , 1386 cm^{-1} puncak CH dan CH_3 dan 1075 cm^{-1} puncak Si-O-Si, Si-O-Ti, dan 793 cm^{-1} merupakan petunjuk adanya ikatan Si-O-Si. Spektrometri dispersive elektron (EDS) menunjukkan bahwa semakin tinggi kandungan ENR yang ditambahkan, semakin tinggi karbon di dalam komposit, dan semakin kecil kandungan titanium dan silikon, Elektron mikroskop sapuan (SEM) menunjukkan bahwa permukaan sampel yang diperoleh mengandung partikel dengan ukuran 1,2 μm sampai 2,75 μm dan secara mikro tidak homogen.

ABSTRACT

A new type of organic-inorganic hybrid composite was prepared by sol-gel process. Fifty percent epoxidized natural rubber (ENR-50) was used in the process. The silica and titania that constituted the inorganic phase was produced by the hydrolysis and condensation of metal alkoxides, from tetraethoxysilane (TEOS) and tetrabutylorthotitanat (TiBT). The composition of the composites were varied by changing the ENR-50 with the relative amount of TEOS and TiBT. Thermogravimetry analysis showed that decomposition begin at 425 to 465 °C. Thin film casting from material having a relatively low ENR content were transparent, rigid and brittle while those with high ENR content were flexible, transparent and slight colouration. The UV-Vis analysis showed that the absorption started at 200 to 320 nm. FT-IR analysis showed peaks at 3441 cm^{-1} for OH, 2974 cm^{-1} for C-C and CH bands, 2945 cm^{-1} can be attributed to Si-OH, 1464 cm^{-1} and 1368 cm^{-1} for CH and CH_3 , 1075 cm^{-1} for Si-O-Si, Si-O-Ti and 793 cm^{-1} peak Si-O-Si. Scanning electron microscopy showed that the surface consist the particles of 1.2 μm to 2.75 μm in the composite are slightly inhomogeneous at micro scope level.

KATA KUNCI

Komposit, Proses sol-gel, ENR, Titania, Silika

1. PENDAHULUAN

Proses sol-gel merupakan suatu proses kimia dalam suatu larutan pada temperatur rendah yang melibatkan dua proses penting yaitu hidrolisis dari logam alkoksida kemudian dilanjutkan dengan reaksi kondensasi untuk menghasilkan logam oksida. Penyelidikan ini mulai berkembang beberapa dekade yang lalu. Proses sol-gel banyak digunakan untuk pengembangan dan pembuatan keramik, komposit, fiber dan kaca dengan kemurnian yang tinggi.^{1,2}

Pembuatan komposit organik-anorganik sangat sukar dilakukan secara konvensional, karena pada umumnya senyawa organik tidak tahan terhadap temperatur yang tinggi. Untuk pembuatan komposit organik-anorganik proses sol-gel, merupakan suatu alternatif, karena tidak merusak senyawa organik yang digunakan. Komposit organik-anorganik yang dihasilkan melalui proses sol-gel dapat digunakan sebagai optik, pelapisan dan meningkatkan dekomposisi molekul organik pada temperatur yang lebih tinggi.³

ENR merupakan polimer alam yang berasal dari karet alam, mempunyai densitas yang rendah, spesifik kekenyalan yang tinggi dan kekuatan yang tinggi. ENR-50 dapat didefinisikan dengan suatu ikatan yang panjang dari karet alam yang mempunyai gugus epoksida sebanyak 50 %. Pengepoksidaan karet alam terhadap ikatan rangkap secara terkawal akan dapat menghasilkan karet yang mempunyai sifat rintangan terhadap minyak, mengurangi serapan gas dan tahan terhadap reaksi ozonisasi.

Keramik dan polimer merupakan dua group senyawa yang penting dalam bidang bahan. Keramik mempunyai sifat stabilitas panas yang tinggi, mempunyai sifat optik yang baik dan modulus yang tinggi tetapi sangat rapuh dan kaku, sedangkan polimer mempunyai sifat kenyal, tegasan dan kekuatan yang tinggi. Pengembangan material baru yang mengandung senyawa organik dan anorganik merupakan suatu hal yang sangat menarik. Penggabungan dua sifat yang sangat berbeda ini akan dapat menghasilkan suatu material baru yang unggul. Proses sol-gel dapat digunakan untuk menggabungkan kedua bahan tersebut.⁴

Kaca silikat yang dimodifikasi dengan senyawa organik dan dipoli-merisasi secara bersamaan dengan TiBT melalui proses sol-gel, memberikan sifat optik yang baik, dimana prosesnya dapat dilakukan pada temperatur < 150 °C. Suatu pengembangan yang menarik dan alternatif lain adalah penggunaan senyawa organik yang mempunyai sifat Fluoresen seperti rhodamin B, PMMA dan coumarin.⁵

Di dalam penyelidikan ini beberapa pengerjaan yang telah dilakukan untuk menghasilkan komposit organik-anorganik silika-titania dengan ENR-50. Dengan memvariasikan senyawa organik (ENR-50) di dalam hidrid silika dan titania. Komposit yang dihasilkan dianalisis secara termogravimetri (TGA), Spektroskopi ultra lembayung-tampak (UV-Vis), Elektron mikroskop sapuan (SEM), Spektrometer sinar X (EDS), Fourier transform infra merah (FT-IR), Sedangkan Tegasan, modulus dan ketahanan akan dilaporkan pada kertas lain.

2. METODE

2.1. Bahan kimia yang digunakan.

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini merupakan grade analysis (AR) yang terdiri dari : tetraetoksiorto-silana (TEOS Fluka, assay >98 %, densitas 0,933), tetrabutylortotitanat (TiBT Fluka), propanol (JT. Baker), etanol (Scharlau, 95 %), asam klorida (HCl Merek, 37 %), air suling dan karet alam terepoksida-50 (ENR-50)

2.2. Cara kerja

5.5 g Tetraetoksiortosilana (TEOS) dicampur dengan 10 ml larutan campuran A (alkohol, Air dan asam klorida), kemudian dipanaskan pada temperatur 60 °C selama 2 jam sambil dilakukan pengadukan dengan stirrer. Pengadukan dan pemanasan ini dilakukan dengan sistim pendinginan (kondenser) yang berfungsi untuk menghindarkan terjadinya penguapan pelarut dan TEOS. Pada bahagian lain dilakukan pengadukan 1 g tetrabutylortotitanat (TiBT) di dalam 20 ml propanol-2. Larutan ini ditambahkan tetes pertetes ke dalam larutan campuran TEOS

sambil diaduk pada temperatur 60 °C dan dilanjutkan pengadukan selama 20 menit. Pada bagian lain x g ENR dilarutkan di dalam 77 ml toluen, ke-mudian disaring. Campuran TEOS dan TiBT ditambahkan tetes per tetes ke dalam larutan ENR di dalam pelarut toluen. Pengadukan dan pemanasan di-lanjutkan pada temperatur 60 °C selama 24 jam, dipindahkan ke dalam cawan petri dan ditutup dengan kertas alumi-nium yang

dilobangi bagian atasnya, biarkan selama 1 minggu. Komposit yang terbentuk dikeringkan di dalam oven vakum pada temperatur 40 °C dengan tekanan 20 mmHg. Komposit yang diperoleh dianalisis untuk mengetahui sifat-sifatnya. Komposisi pembuatan komposit dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi pembuatan komposit silika-titania-ENR.

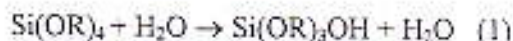
No	TEOS (g)	TiBT (g)	Campuran A (ml)	ENR (g)	Propanol (ml)	Toluen (ml)
16	5.5	1.0	10	2.5	20	77
17	5.5	1.0	10	3.0	20	77
18	5.5	1.0	10	3.5	20	77
19	5.5	1.0	10	4.0	20	77
20	5.5	1.0	10	5.0	20	77

→

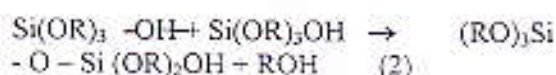
3. HASIL DAN DISKUSI

Komposisi pada Tabel 1 diperoleh komposit dengan beberapa sifat, komposit 16 adalah transparan, keku-ningan rapuh dan kaku, sedangkan komposit 17, 18, 19 dan 20 bersifat trans-paran, berwarna, kenyal, kuat dan tidak mudah pecah. Sifat komposit silika-titania-ENR-50, sangat dipengaruhi oleh kandungan ENR. →

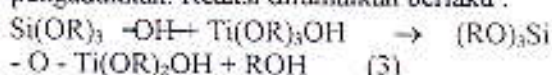
Di dalam proses Pembuatan komposit SiO₂-TiO₂-ENR memerlukan beberapa tahap reaksi, karena perbedaan kereaktifan TEOS dan TiBT. Pengerjaan awal adalah penambahan sejumlah air, alkohol dan HCl ke dalam larutan TEOS pada temperatur 60 °C untuk membentuk silanol (C₂H₅O)₃-Si-OH seperti reaksi berikut.



Larutan etoksiortosilanol akan mengalami polimerisasi sendiri dengan spesies kurang aktif kedua seperti :



Proses polimerisasi ini akan berjalan selama beberapa jam pertama. Untuk menghindari polimerisasi sendiri dari etoksiortosilanol, dilakukan pen-dingin-an larutan, kemudian ditambahkan TiBT sambil dilakukan pengadukan. Reaksi diramalkan berlaku :



Reaksi ini adalah eksoterm dan berlangsung lebih cepat dari polimerisasi tetraetoksiortosilanol, kemudian akan di-lanjutkan dengan reaksi yang berterusan sampai membentuk polimer dan dilan-jutkan penambahan ENR. Reaksi (3) akan berlangsung lebih cepat bila dibandingkan dengan reaksi (2), pemben-tukan silika-titania jauh lebih cepat dari pada pembentukan silika-silika.^{10,11} Hasil pengukuran sampel komposit dengan TGA dapat dilihat pada Tabel 2.

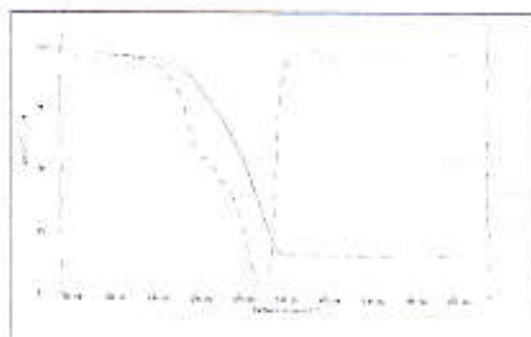
Tabel 2. Keputusan TGA dari beberapa komposit

No	TiO ₂ -SiO ₂ (%) TGA	Temperatur Dekomposisi
16	47,72	465,4
17	40,28	440,1
18	36,80	428,6
19	26,73	424,6
20	21,19	436,8

Tabel 2 memperlihatkan, bahwa semakin tinggi kandungan karet yang diberikan semakin kecil kandungan silika dan titania yang diperoleh dan semakin besar kandungan karet dalam komposit. Dekomposisi komposit pada berbagai konsentrasi ENR mulai dari temperatur 425 °C sampai 465 °C, menandakan adanya penguraian karet yang terdapat di dalam komposit.

Penguapan pelarut yang terikat di dalam komposit akan dimulai pada temperatur 220 °C sampai dengan 260 °C, sedangkan pelarut seperti air, alkohol dan toluena akan menguap pada temperatur < 220 °C. Apabila kita bandingkan antara dekomposisi dari ENR-50 murni dengan dekomposisi komposit yang diperoleh, kelihatan bahwa dekomposisi ENR adalah pada temperatur 420 °C, ini berarti dengan terbentuknya komposit silika titania dan ENR akan dapat meningkatkan dekomposisi.^{14,15}

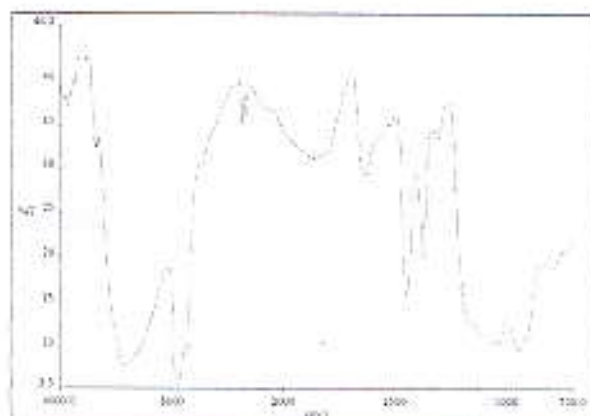
Gambar 1 memperlihatkan hubungan kehilangan berat dengan temperatur. Dimana semakin tinggi temperatur yang digunakan dalam penguraian komposit akan semakin besar kehilangan berat dari komposit tersebut, pada temperatur dekomposisi pada 465 °C ENR akan terurai, sedangkan silika dan titania akan tetap berada dalam bentuk oksidanya.



Gambar 1. Kurva Hasil Pengukuran TGA Komposit 20.

Gambar 2 memperlihatkan hasil pengukuran FTIR komposit dengan menggunakan pellet KBr, pada panjang gelombang 4000 cm⁻¹ sampai 450 cm⁻¹. Hasil analisis menunjukkan bahwa sampel yang diperoleh adalah bersifat homogen, dimana semua puncak yang diberikan dapat diinterpretasikan dan jelas. Puncak-puncak tersebut adalah :3441 cm⁻¹, yang merupakan puncak OH baik yang berasal dari air, alkohol maupun dari Si-OH. 2974 cm⁻¹ merupakan puncak yang berasal dari C-C dan C-H, 2945 cm⁻¹ merupakan puncak yang ditimbulkan oleh keberadaan air bebas dan Si-OH, 1464 cm⁻¹ dan 1386 cm⁻¹ merupakan gugus CH dan CH₃, 1075 cm⁻¹ Si-O-Si, Si-O-Ti, puncak ini sangat tergantung kepada ketajaman yang ditimbulkannya, dimana puncak yang tajam merupakan adanya ikatan Si-O-Ti, sedangkan puncak yang lebar menunjukkan adanya Si-O-Si. 942 cm⁻¹ menunjukkan adanya ikatan Ti-O-Ti dan Si-OH. 793 cm⁻¹ merupakan petunjuk adanya ikatan Si-O-Si. Hasil ini sesuai dengan yang dilaporkan oleh beberapa peneliti, 3350 cm⁻¹ merupakan puncak O-H Stretching, 3000-2850 cm⁻¹ merupakan puncak C-H, 1500-1300 cm⁻¹ puncak vibrasi metil atau etil, 1085 cm⁻¹ puncak Si-O-Si cm⁻¹ 949cm⁻¹ merupakan puncak Si-OH. Ti-O-Si menyerap pada panjang gelombang 945 cm⁻¹, sedangkan Si-O-Si juga menyerap pada panjang gelombang 660-665 cm⁻¹ Puncak Si-O-Ti, Si-O-Si adalah sangat sukar dibedakan, karena penyerapan Si-O-Si adalah sama dengan penyerapan Si-O-Ti dan Si-O-Zr yaitu pada 920-1100 cm⁻¹ Perbedaan puncak hanya dapat dilihat dari segi ketajamannya, dimana penyerapan Si-O-

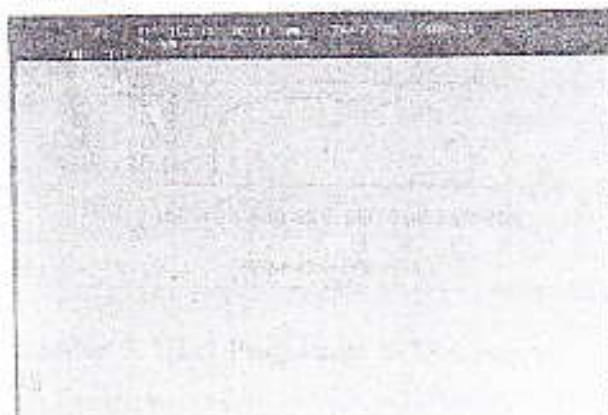
Si memberikan puncak yang lebih lebar, dibandingkan dengan puncak yang disebabkan oleh Si-O-Ti dan Zr-O-Si.^{12,16}



Gambar 2. Hasil Pengukuran FT-IR Komposit 16.

Gambar 3 memperlihatkan morfologi dari komposit Silika-Titania-ENR dengan menggunakan SEM. Walaupun komposit yang dihasilkan kelihatan homogen, hasil analisis SEM menunjukkan adanya partikel-partikel kecil yang terbentuk dengan ukuran 1,2 µm sampai 2,75 µm. Adanya partikel-partikel kecil disebabkan oleh perbedaan kereaktifan dari TEOS dan TiBT dan presipitasi lebih awal terbentuk dari pada gel.

Partikel-partikel kecil tersebut dilakukan analisis dengan EDX, Hasil analisis menunjukkan bahwa partikel tersebut mengandung silikon, titanium dan oksigen, sedangkan pada bahagian yang tidak mengandung partikel kecil ditemukan juga karbon.



Gambar 3. Hasil Pengukuran SEM komposit 18

Gambar 4 memperlihatkan hasil pengukuran komposit dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 800 nm sampai 200 nm sedangkan data pengukuran pada beberapa panjang gelombang dapat dilihat pada Tabel 4.

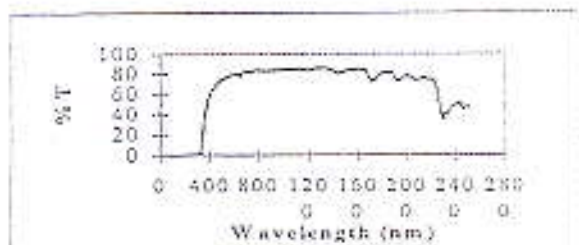
Tabel 4. Pengaruh kandungan ENR terhadap serapan panjang gelombang

Kode sampel	Tebal (mm)	(%T) pada panjang gelombang (nm)				
		374	420	520	620	720
16	0,36	33,7	66,7	84,6	8,6	88,4
17	0,38	31,8	64,9	81,9	8,2	86,2
18	0,20	28,8	53,8	76,4	81,0	82,6
19	0,34	26,9	52,3	67,7	73,9	76,4
20	0,29	24,6	46,9	63,2	70,8	72,5

Tabel 4 memperlihatkan bahwa komposit menyerap sangat kuat pada daerah sinar lembayung (UV), sedangkan pada daerah sinar tampak penyerapan komposit kecil. Semakin tinggi kandungan ENR semakin besar penyerapannya, menunjukkan bahwa ENR menyerap sinar UV-Vis. Komposit yang dihasilkan berkemungkinan besar untuk dapat dikembangkan untuk optik dan pelapisan kaca.

Gambar 4 memperlihatkan komposit yang dihasilkan adalah bersifat transparan pada daerah sinar tampak dan bersifat opak pada daerah sinar lembayung. Penyerapan maksimum pada panjang gelombang 200-320 nm yaitu 100 %. Hasil ini sesuai dengan yang dilaporkan oleh Wang dkk, bahwa komposit organik-anorganik yang disediakan dengan proses sol-gel adalah bersifat transparan pada daerah sinar tampak dan opak pada daerah sinar lembayung.¹⁷ Semakin tinggi kandungan karet di dalam komposit, semakin rendah transmittan yang diberikan oleh komposit tersebut, hal ini berarti bahwa ENR menyerap sinar tampak maupun sinar lembayung. Sifat transparan sampel sangat tergantung pada ukuran partikel, distribusi partikel dan bentuk partikel dari partikel silika dan titania di dalam komposit.

Bagaimanapun kandungan titania kecil dari 20 % menyebabkan bertambahnya ukuran partikel dan mengurangi kehomogenan komposit, sehingga menyebabkan bersifat opak.¹⁸



Gambar 4. Kurva hasil pengukuran UV-Vis komposit

4. KESIMPULAN

Komposit silika-titania-ENR yang diperoleh adalah berbentuk filem tipis, berwarna dan transparan. Warna komposit yang dihasilkan dipengaruhi oleh kandungan ENR di dalam komposit. Hasil TGA menunjukkan bahwa komposit yang diperoleh terdekomposisi pada temperatur 425 °C sampai 465 °C. UV-Vis menunjukkan bahwa komposit silika-titania-ENR adalah bersifat opak pada daerah UV, dan transparan pada daerah tampak. Pemisahan fasa yang terjadi dipengaruhi oleh kandungan ENR. SEM menunjukkan bahwa morfologi permukaan adalah tidak homogen secara mikro dengan ukuran partikel 1,2 µm sampai 2,75 µm.

UCAPAN TERIMA KASIH.

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Universiti Sains Malaysia dan Pusat Penelitian dan Pengabdian Masyarakat, Dikti, Jakarta, Atas segala bantuan dan fasilitas yang diberikan sehingga makalah ini dapat diselesaikan.

DAFTAR PUSTAKA

1. C.J. Brinker, and G.W. Scherer, *Sol-Gel Science, the physics and chemistry of sol-gel processing*, Academic Press, New York, 908. (1990)
2. J.D. Mackenzie, *J. Non. Cryst. Solids*, 100, 162-168. (1988)
3. H. Schmidt and H. Wolter, *J. Non. Cryst. Solids*, 120:428. (1990)
4. S. Sakka, *Sol-Gel Science and Technology*, 3, 69-81 (1994).
5. Z. Ahmad, M.I. Sarwar, S. Wang and J.E. Mark, *Polymer*, 38 (17), 4523-4529, (1997).
6. M.P. Stevens, *Polymer Chemistry*, 2nd Ed. Oxford University. (1990)
7. I.R. Gelling, *Proceeding International Rubber Technology Conference*, Malaysia, 415-427. (1988).
8. H. Schmidt, *J. Non. Cryst. Solid*, 100, 51-64. (1988).
9. M. Bertolotti, P. DiFrancesco, E. Fazio, G. Guappi, M. Gressani, F. Micchelotti, A. Montenero, G. Nacalao, C. Sibilina, *J. Non. Cryst. Solids* 168, 77, (1994).
10. B.E. Yoldas, *J. Non. Cryst. Solids*, 38 and 39, 81. (1980).
11. K. Kamiya, S. Sakka and I. Yamanaka, *10th Intl. Glasses congress proceeding*, Kyoto, Japan, 13-44, (1974).
12. C.D. Volve, S. Dire, E. Pagani, *J. Non. Cryst. Solids*, 209, 51, (1997).
13. S. Dire, E. Pagani, F. Baboneau, R. Ceccato and G. Carturan, *J. Mater. Chem*, 7(1), 67 (1997).
14. R.M. Almeida, T.A. Gilton and S.E. Wiberley, *J. Non. Cryst. Solids*, 120, 193, (1990).
15. I.M.M. Salvado, and I.M.F. Navaro, *J. Non. Cryst. Solids*, 147 and 148, 256, (1992).
16. U. Wellbrock, W. Beier and G.H. Frischat, *J. Non. Cryst. Solids*, 147 and 148, 350, (1992).
17. B. Wang, and G.L. Wilkes, *Journal of Polymer Science*, 29, 905-909, (1991).
18. Z. Ahmad, M.I. Sarwar and J.E. Mark, *J. Mater. Chem*, 7, (2), 259-263. (1997)