

SINTESIS MEMBRAN KITOSAN TERMODIFIKASI SILIKA ABU SEKAM PADI UNTUK PROSES DEKOLORISASI

Nova Shintia Bokau*), Eko Budi Susatyo dan Mohammad Alauhdin

Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang

Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati Telp. (024)8508112 Semarang 50229

Info Artikel

Sejarah Artikel:
Diterima Maret 2014
Disetujui Maret 2014
Dipublikasikan Mei 2014

Kata kunci:
membran kitosan-silika
dekolorisasi zat warna

Abstrak

Penelitian mengenai sintesis membran kitosan termodifikasi silika abu sekam padi untuk proses dekolorisasi telah berhasil dilakukan. Membran kitosan termodifikasi silika abu sekam padi disintesis menggunakan metode pembalikan fasa pada berbagai variasi massa silika abu sekam padi. Variasi yang dilakukan yaitu kitosan-silika 1:0; 1:0,5; 1:1; 1:1,5; 1:2. Tujuan dari penelitian ini yaitu untuk mengetahui perbedaan karakteristik membran kitosan dengan membran kitosan-silika, mengetahui pengaruh penambahan massa silika abu sekam padi terhadap karakteristik membran kitosan-silika, serta untuk mengetahui kemampuan membran kitosan-silika dalam proses dekolorisasi zat warna. Hasil karakterisasi *swelling* membran kitosan-silika menunjukkan bahwa indeks *swelling* semakin bertambah seiring dengan penambahan massa silika abu sekam padi. Karakterisasi FT-IR menunjukkan gugus fungsi yang terdapat pada membran antara lain OH, NH₂, Si-O-R dan Si-O-Si. Pengukuran koefisien rejeksi yang menunjukkan selektivitas membran dilakukan pada proses dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue*. Komposisi terbaik diperoleh pada membran kitosan-silika 1:2 dengan koefisien rejeksi sebesar 88,41%.

Abstract

Research on the synthesis of chitosan membran modified with silica rice husk ash and its application on the decolorization process has been done. Chitosan-silica membran was synthesized through inverse phase. Chitosan-silica membrans were prepared by varying the mass of silica rice husk ash. The ratio of chitosan and silica are 1:0, 1:0.5, 1:1, 1:1.5, 1:2. The purpose of this study were to determine differences of the characteristics of chitosan and chitosan-silica membrans, to find out the effect of mass of silica rice husk ash toward chitosan-silica membran characteristic, and to examine the effectiveness of chitosan-silica membran on the decolorization process. Swelling test of distilled water characterization showed the increasing of swelling index along with the increasing mass of silica. FT-IR (*Fourier Transform Infra Red*) characterization showed that functional groups present in the membran are OH, NH₂, Si-O-R and Si-O-Si. The best composition is obtained on chitosan-silica membran 1:2 with 88.41% of rejection coefficient.

Pendahuluan

Pencemaran lingkungan semakin meningkat seiring dengan perkembangan industri yang pesat. Penggunaan zat warna tekstil umumnya memberikan dampak yang negatif karena memberikan kontribusi yang besar pada pencemaran air apabila limbah dibuang tanpa pengolahan terlebih dahulu (Indrawati; 2008). Zat warna tekstil adalah semua zat warna yang mempunyai kemampuan untuk diserap oleh serat tekstil dan mudah dihilangkan. Zat warna mempunyai gugus yang dapat menimbulkan warna disebut gugus kromofor dan gugus yang dapat mengadakan ikatan dengan serat tekstil disebut auksokrom (Dewi, dkk; 2006). Zat warna tekstil banyak digunakan pada proses pencelupan dan pencapan. Zat warna reaktif yang banyak digunakan diantaranya: *Remazol Brilliant Blue*, *Remazol Red*, *Remazol Golden Yellow*, *Remazol Orange 3R*, *Remazol Black B*. Zat warna *Remazol Brilliant Blue* merupakan zat warna reaktif yang sering digunakan untuk proses pencelupan pada kain (Noorikhlas, dkk; 2008).

Dalam penelitian ini telah dilakukan proses dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue* dengan metode filtrasi. Proses dekolorisasi diartikan sebagai proses penurunan intensitas warna. Zat warna *Remazol Brilliant Blue* merupakan salah satu zat warna yang bersifat karsinogenik karena dapat merangsang tumbuhnya kanker, dapat membahayakan bagi kesehatan, perubahan mempengaruhi kandungan oksigen dalam air, mempengaruhi pH air lingkungan yang menjadikan gangguan bagi mikroorganisme dan hewan air (Nirmasari & Asty; 2008).

Modifikasi kitosan dan silika ini dapat dimanfaatkan sebagai bahan baku sintesis material berbasis silika untuk proses dekolorisasi zat warna dengan metode filtrasi. Silika dapat disintesis dari berbagai macam sumber daya alam yang mengandung banyak silika. Salah satu sumber silika yang sejauh ini belum dimanfaatkan secara maksimal adalah sekam padi. Sekam padi pada umumnya dibuang begitu saja dan menjadi sampah yang menyebabkan pencemaran lingkungan. Sejauh ini pemanfaatan limbah tersebut diantaranya sebagai bahan bakar dan sebagai bahan tambahan pembuatan batu bata. Untuk lebih meningkatkan nilai tambah dari limbah sekam padi dilakukan pengolahan salah satunya diproduksi menjadi silika. Dari penelitian yang telah dilakukan oleh Harsono (2002) menunjukkan

kandungan dari abu sekam padi banyak mengandung silika sebesar 94-96 % dan apabila nilainya kurang dari 90%, kemungkinan disebabkan oleh sampel sekam yang telah terkontaminasi zat lain.

Melihat potensi dari silika dan kitosan, kedua material tersebut dapat disintesis menjadi membran sebagai salah satu material yang dapat digunakan dalam proses filtrasi dan manfaat lainnya. Membran komposit kitosan-silika mempunyai prospek yang sangat baik, karena akan berdampak positif pada pengurangan (filtrasi) pada logam-logam berat dan dapat pula dijadikan sebagai media untuk dekolorisasi zat warna. Dalam penelitian ini telah dilakukan dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue* menggunakan membran kitosan yang telah dimodifikasi dengan penambahan silika abu sekam padi. Kitosan digunakan sebagai zat perekat bagi partikel-partikel silika agar menyatu membentuk satu ikatan sehingga dihasilkan suatu membran padat (Handayani; 2009). Disamping itu diamati pula kinerja membran setelah penggunaan secara berulang. Tujuan dari penelitian ini yaitu untuk mengetahui perbedaan karakteristik membran kitosan dengan membran kitosan-silika, mengetahui pengaruh penambahan massa silika abu sekam padi terhadap karakteristik membran kitosan-silika, serta untuk mengetahui kemampuan membran kitosan-silika dalam proses dekolorisasi zat warna.

Metode Penelitian

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah alat-alat gelas, neraca analitik AND GR-200, oven Precision GCA Corp, Tube furnace 79400, pompa vakum. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah kitosan, sekam padi, akuades, HCl, NaOH, zat warna *Remazol Brilliant Blue*, CH₃COOH (Buatan Merck dengan kualitas *pro analyst*).

Sekam padi yang telah diperoleh dilakukan pencucian menggunakan akuades kemudian dikeringkan dibawah sinar matahari. Sekam padi yang telah kering kemudian dilakukan pengarangan. Hasil dari pengarangan dipanaskan mula-mula pada suhu 300°C selama 30 menit kemudian dilanjutkan dipanaskan pada suhu 600 dan 800°C selama 6 jam dengan menggunakan *furnace*.

Sebanyak 20 gram silika abu sekam padi yang telah dimurnikan ditambahkan dengan 158 mL NaOH 4 M (stoikiometri), kemudian dididihkan sambil diaduk dengan pengaduk

magnet. Setelah agak kering, larutan dituangkan kedalam cawan porselen dan dilebur pada temperatur 600°C selama 30 menit. Pembuatan membran kitosan-silika dilakukan dengan mencampurkan sol silika yang telah dibuat dengan larutan kitosan. Campuran diaduk sampai homogen (Cregg, *et al.*; 2009). Setelah campuran homogen, kemudian dilakukan pencetakan. Membran yang disintesis divariasi komposisi sol silika yang ditambahkan sebesar 1:0; 1:0.5; 1:1; 1:1.5; 1:2, kemudian dilakukan karakterisasi gugus fungsi.

Membran yang telah disintesis digunakan untuk aplikasi. Setelah digunakan untuk aplikasi digunakan kembali untuk proses dekolerasi larutan zat warna *Remazol Brilliant Blue* dengan konsentrasi yang sama. Sebelum digunakan untuk proses pengulangan, terlebih dahulu membran dicuci menggunakan akuades dan direndam menggunakan larutan NaOH 5%. Tahap ini dilakukan untuk membersihkan membran dari pengotor serta membuka pori membran kembali.

Karakteristik membran kitosan-silika dapat dilihat dari gugus fungsi membran, data *swelling*, permeabilitas membran dan pengukuran koefisien rejeksi terhadap zat warna tekstil, dan kemampuan membran kitosan-silika yang digunakan secara berulang.

Hasil dan Pembahasan

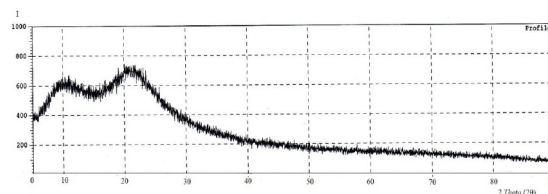
Sekam padi yang telah bersih dan kering kemudian dilakukan pengarangan. Langkah ini bertujuan untuk membantu mempercepat proses pengabuan. Proses pengabuan yang dilakukan secara langsung tanpa dibantu proses pengarangan akan membutuhkan waktu yang lebih lama. Silika abu sekam padi yang dihasilkan kemudian dilakukan pemurnian. Pemurnian dalam kondisi asam bertujuan untuk mengeliminasi kandungan logam dan non logam yang terkandung dalam abu sekam padi. Menurut Handayani (2009), konsentrasi asam yang lebih tinggi menyebabkan semakin banyak impuritas yang dieliminasi sehingga silika yang dihasilkan lebih murni. Sekam padi yang disintesis tersebut dihitung randemen yang dihasilkan.

Tabel 1. Data hasil randemen silika abu sekam padi

No	Massa Arang Sekam Padi (gram)	Massa Abu Sekam Padi (gram)	Kadar Abu Sekam Padi (%)
1.	180	90,6482	49,6398
2.	250	122,0160	51,1936
3.	250	119,3080	52,2768
Kadar rata-rata abu sekam padi			= 51,0367 %

Silika hasil sintesis kemudian dianalisis kristalinitasnya menggunakan *X-Ray Diffractometer*.

Analisis menggunakan XRD ini bertujuan untuk mengetahui struktur kristal dari silika abu sekam padi yang dihasilkan. Sampel di-*scan* dari daerah pengamatan antara 5-90 derajat. Data yang diperoleh berupa jarak antar bidang, intensitas dan besar sudut (2θ) yang kemudian dicocokkan dengan data pola difraksi sinar-X JCPDS (*Joint Committee for Powder Diffraction Standard*) dan hasil penelitian lain yang telah dilakukan sehingga senyawa yang terdapat dalam sampel dapat diidentifikasi. Hasil analisis menggunakan XRD menghasilkan difraktogram sebagai berikut.

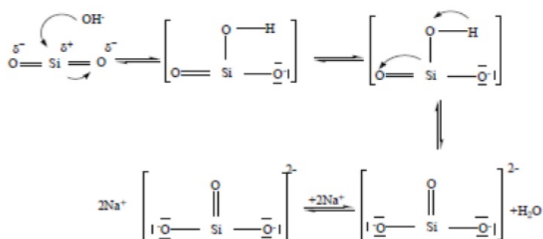
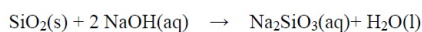


Gambar 1. Hasil difraktogram silika abu sekam padi

Pada difraktogram, puncak silika muncul tajam pada $2\theta = 21,7200$; $2\theta = 20,880$; $2\theta = 22,5200$. Puncak tajam tersebut menunjukkan bahwa silika abu sekam padi hasil sintesis mengandung banyak silika oksida. Silika oksida yang dihasilkan dari sintesis ini memiliki fasa amorf yang lebih banyak. Hal tersebut ditunjukkan dengan bentuk puncak pada hasil difraktogram yang tidak terlalu tajam dengan intensitas tidak terlalu tinggi. Silika dalam fasa amorf lebih mudah larut jika dibandingkan dengan fasa kristalin (Barrer dalam Nur; 2001). Puncak tajam silika abu sekam padi ini sesuai dengan data JCPDS nomor 39-1425 yang menunjukkan hasil yang hampir sama. Penelitian yang dilakukan oleh Tse, *et al.* dalam Hanafi (2010), menunjukkan bahwa pola silika oksida pada fasa amorf muncul pada $2\theta = 20-27^\circ$.

Silika abu sekam padi yang telah dihasilkan kemudian dilakukan pembuatan natrium silikat. Pembuatan natrium silikat dari abu sekam padi didasarkan pada penelitian yang dilakukan oleh Rasy, dkk (2010). Abu sekam padi ditambah dengan NaOH 4M. Proses pelarutan ini dilakukan diatas *hotplate stirrer* dan proses pelarutan ini dihentikan ketika larutan mendidih dan mengental. Pelarutan yang diikuti dengan peburan ini bertujuan agar pada proses perubahan abu sekam padi menjadi natrium silikat (Na_2SiO_3) menjadi lebih optimal. Natrium silikat hasil sintesis ini kemudian dianalisis kandungan silika oksidanya menggunakan AAS. Natrium silikat yang telah disintesis ini memiliki kandungan silika oksida

(SiO₂) sebesar 69,5%. Besarnya kandungan SiO₂ tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Kalapathy, dkk (2000), yang menunjukkan bahwa kandungan silika abu sekam padi cukup tinggi yaitu >60%. Kemungkinan reaksi yang terjadi pada saat pembuatan natrium silikat ini adalah sebagai berikut:



Gambar 2. Model mekanisme reaksi pembentukan natrium silikat

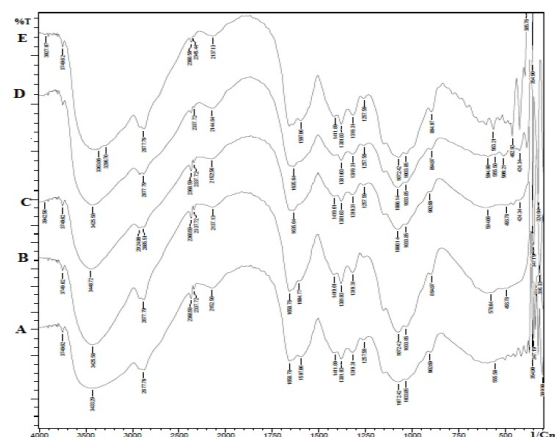
Pada temperatur yang tinggi, natrium hidroksida akan meleleh dan terdisosiasi membentuk ion natrium dan ion hidroksida. Pada silika oksida (SiO₂), elektronegatifitas atom O yang tinggi menyebabkan Si lebih elektropositif dan membentuk *intermediet* [SiO₂OH]⁻ yang tidak stabil. Dalam hal ini akan terjadi dehidrogenasi dan ion hidroksil yang kedua akan berikatan dengan hidrogen membentuk molekul air. Dua ion Na⁺ akan menyeimbangkan muatan negatif yang terbentuk dan berinteraksi dengan ion SiO₃²⁻ sehingga membentuk natrium silikat (Na₂SiO₃).

Pembuatan membran kitosan-silika dilakukan dengan cara menambahkan silika dalam bentuk prekursor natrium silikat ke dalam larutan kitosan 2% (b/v). Teknik pembuatan membran yang dilakukan ini merupakan teknik inversi fasa dimana proses transformasi polimer dari fasa cair ke fasa padat dapat dikendalikan. Campuran salah satu fasa cair yang mengandung polimer berkonsentrasi tinggi akan memadat dan membentuk matriks sehingga morfologi membran dapat diatur. Langkah selanjutnya dalam pembuatan membran kitosan-silika adalah dengan mencampurkan larutan kitosan dengan larutan natrium silikat sebagai prekursor sumber silika. Perbandingan kitosan dan silika yang digunakan pada penelitian ini yaitu 1:0; 1:0,5; 1:1; 1:1,5 dan 1:2. Campuran ini kemudian disonikasi menggunakan alat ultrasonik. Sonikasi ini bertujuan untuk menghomogenkan campuran kitosan dan silika yang telah dicampurkan. Menurut Handayani (2009), sonikasi akan menghasilkan membran dengan homogenitas yang lebih baik. Membran yang telah kering membuktikan bahwa proses

gelatinisasi telah berakhir dan pelarut menguap sempurna (Nadarajah; 2005).

Membran kitosan-silika hasil sintesis ini masih bersifat asam, sehingga perlu dilakukan proses netralisasi menggunakan larutan basa. Membran kitosan-silika yang telah kering direndam menggunakan larutan NaOH 5%. Menurut Lin (2007), perendaman membran ke dalam larutan alkali bertujuan untuk mengubah kation gugus amina (-NH₃⁺) menjadi gugus amina bebas (-NH₂). Perendaman menggunakan NaOH ini selain bertujuan agar diperoleh membran dengan pH netral, juga bertujuan untuk mengkoagulasikan membran kitosan-silika agar diperoleh membran yang lebih stabil. Setelah perendaman dengan larutan NaOH, membran dicuci dengan akuades hingga netral.

Analisis menggunakan FT-IR digunakan untuk mengetahui gugus fungsi membran kitosan dengan adanya penambahan silika abu sekam padi. Spektra FT-IR gabungan membran kitosan-silika ditunjukkan dengan Gambar 3.



Gambar 3. Spektra FT-IR gabungan membran (A) membran kitosan; (B) membran kitosan-silika 1:0,5; (C) membran kitosan-silika 1:1; (D) membran kitosan 1:1,5; (E) membran kitosan-silika 1:2.

Dari spektra FT-IR gabungan membran yang ditunjukkan pada Gambar 3 dilakukan analisis gugus fungsi pada membran kitosan dan membran kitosan silika. Hasil analisis gugus fungsi yang diperoleh dari Gambar 3, dipaparkan melalui Tabel 2.

Tabel 2. Hasil analisis gugus fungsi membran kitosan-silika

Jenis serapan	Bilangan gelombang yang diperoleh (cm ⁻¹) dalam membran kitosan-silika			
	1:0	1:0.5	1:1	1:1.5
Si-O-C	-	-	594,08	594,08
Si-OH	-	-	902,69	894,97
Uluran Si-O-Si	-	1072,42	1080,14	1080,14
Tekukan C-H	1381,03	1381,03	1381,03	1381,03
Tekukan CH ₂	1411,89	1419,61	1419,61	-
CO-NH ₂	1658,78	1658,78	1635,64	1635,64
Uluran CH	2877,79	2877,79	2885,51	2877,79
Uluran OH	3433,29	3425,58	3448,72	3425,58
NH ₃ ⁺	-	-	-	-

Dari Tabel 2 dapat dilihat terdapat beberapa serapan baru dalam membran kitosan-silika yaitu serapan dari Si-O-C, vibrasi uluran Si-O-Si serta Si-OH yang tidak ditemukan di dalam membran kitosan. Adanya serapan dari Si-O-C mengidentifikasi bahwa silika yang ditambahkan telah berinteraksi dengan kitosan. Uluran Si-OH menunjukkan ikatan hidrogen gugus silanol dari jaringan silika dengan gugus amida ataupun gugus oksida dalam kitosan. Serapan lebar pada daerah 1000-1250 merupakan serapan dari vibrasi ulur simetri Si-O dari Si-O-Si. Dalam membran kitosan-silika 1:0,5; 1:1; 1:1,5; dan 1:2, serapan ini muncul pada bilangan gelombang 1072,42; 1080,14; 1080,14; 1072,42 cm^{-1} .

Adanya penurunan intensitas serapan gugus amida yang cukup signifikan juga menunjukkan adanya kemungkinan silika terikat pada gugus amida ini. Pengaruh adanya koagulasi melalui perendaman membran pada larutan alkali menyebabkan tidak munculnya serapan gugus NH_3^+ pada rentang 1520-1600 cm^{-1} pada membran kitosan-silika hasil sintesis. Interaksi silika dalam membran kitosan-silika dapat dilihat dari menurunnya intensitas uluran N-H di daerah 3270-3290 cm^{-1} yang bertumpang tindih dengan serapan OH. Hal ini disebabkan gugus N-H berikatan dengan silika. Terjadinya interaksi antara silika dengan kitosan ini menyebabkan adanya pembukaan rongga atau celah sehingga menjadikan membran hasil sintesis tersebut memiliki pori. Pori yang terbentuk dalam membran ini dapat dimanfaatkan sebagai media untuk memisahkan antara dua atau lebih molekul yang bercampur.

Membran hasil sintesis kemudian dilakukan uji kapasitas penyerapan air. Penentuan kapasitas penyerapan air oleh membran kitosan-silika ini menggunakan metode yang dilakukan oleh Ray, dkk (2010). Kapasitas penyerapan air oleh membran kitosan-silika disebut juga dengan derajat *swelling*. Data yang diperoleh dari hasil perhitungan kapasitas penyerapan air disajikan pada Tabel 3.

Tabel 3. Data hasil uji *swelling* membran kitosan-silika

Membran Kitosan-Silika	<i>Swelling Index</i> (%)
1:0	45,54
1:0,5	50,13
1:1	53,48
1:1,5	54,18
1:2	54,94

Penambahan silika dalam membran kitosan meningkatkan derajat *swelling* dari membran

tersebut. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Huang, *et al.* (2009) yang menyebutkan bahwa *swelling* dari material hibrida akan bertambah dengan bertambahnya konsentrasi TEOS sebagai sumber silika. Hal yang mempengaruhi derajat *swelling* adalah sifat hidrofilik. Menurut Pierog, *et al.* (2009) salah satu faktor yang mempengaruhi derajat *swelling* adalah hidrofilitas. Dari Tabel 3 dapat disimpulkan bahwa penambahan silika pada membran kitosan-silika sangat mempengaruhi derajat *swelling* membran. Perbedaan derajat *swelling* antara membran kitosan dengan penambahan silika tidak terlalu signifikan. Membran kitosan-silika 1:2 memiliki derajat *swelling* yang paling tinggi dibandingkan dengan membran yang lain.

Permeabilitas suatu membran merupakan ukuran kemampuan dari suatu spesi atau konstituen untuk melewati membran (Handayani; 2009). Secara kuantitas, permeabilitas membran sering dinyatakan sebagai fluks atau koefisien permeabilitas. Fluks adalah jumlah volume permeat yang melewati satuan luas membran dalam waktu tertentu dengan adanya gaya dorong dalam hal ini adalah tekanan. Penentuan fluks dilakukan dengan cara melewatkan akuades pada membran kitosan-silika hasil sintesis. Tekanan yang digunakan pada saat penentuan permeabilitas membran sebesar 12 mmHg. Dari hasil pengukuran dapat dilihat nilai fluks untuk masing-masing membran adalah sebagai berikut.

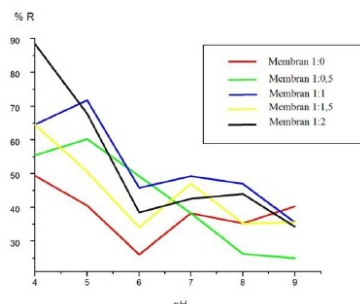
Tabel 4. Hasil perhitungan permeabilitas membran

Membran Kitosan:Silika	Volum Permeat (Liter)	Fluks ($\text{L}/\text{m}^2 \cdot \text{jam}$)
1:0	0,025	30,466
1:0,5	0,025	34,818
1:1	0,025	39,169
1:1,5	0,025	43,760
1:2	0,025	50,626

Dari Tabel 4 dapat dilihat bahwa membran kitosan-silika 1:2 memiliki nilai fluks yang paling besar. Nilai fluks sebanding dengan nilai permeabilitas suatu membran, dengan demikian membran kitosan-silika 1:2 memiliki nilai permeabilitas yang paling tinggi dibandingkan yang lain. Penambahan material anorganik dalam membran kitosan dapat meningkatkan permeabilitas membran tersebut.

Proses dekolorisasi dilakukan dengan cara menentukan pH optimum terlebih dahulu. Tujuan dilakukan optimasi pH larutan zat warna adalah karena pH dapat mempengaruhi gugus fungsi yang berperan aktif dalam proses penurunan kadar zat warna (Wiharadikusumah;

2001). Variasi pH yang digunakan dalam penelitian ini adalah 4 sampai 9. Variasi ini diaplikasikan pada semua membran yang disintesis yaitu membran 1:0; 1:0,5; 1:1; 1:1,5; dan 1:2. Untuk menentukan konsentrasi zat warna pada masing-masing pH terlebih dahulu dibuat kurva kalibrasi. Pengaruh pH terhadap rejeksi zat warna dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Pengaruh pH terhadap koefisien rejeksi

Dari Gambar 4 dapat dilihat bahwa pH 4 merupakan pH optimal untuk proses dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue* dengan menggunakan membran kitosan-silika yang dibuat. Pada proses dekolorisasi terjadi proses filtrasi dan memungkinkan juga terjadi adsorpsi. Mekanisme adsorpsi yang terjadi antara membran kitosan-silika dan zat warna melibatkan gugus $-NH_2$ yang dimiliki oleh kitosan akan berubah menjadi NH_3^+ dalam suasana asam. Menurut Chatterjee, dkk (2009) selama proses adsorpsi protonasi gugus $-NH_2$ diperlukan untuk terjadinya interaksi dengan molekul zat warna yang bermuatan negatif. Pada pH larutan RBB antara 4-9 sebagai umpan, koefisien rejeksi membran kitosan-silika mencapai hasil terbaik pada saat pH RBB 4. Gugus NH_3^+ dalam suasana asam bersifat polikation, sehingga ketika berinteraksi dengan larutan zat warna *Remazol Brilliant Blue* dapat terjadi ikatan. Secara umum mekanisme filtrasi membran menunjukkan selektivitas dari membran tersebut. Selektivitas membran bergantung pada interaksi antarmuka dengan spesi yang akan melewati serta ukuran pori dari membran tersebut. Dalam hal ini membran kitosan-silika 1:2 memiliki pori yang lebih banyak dibandingkan membran yang lain sehingga memiliki situs aktif yang lebih banyak. Situs aktif pada membran yang lebih banyak memungkinkan untuk terjadinya interaksi antarmuka antara molekul zat warna dengan membran kitosan-silika.

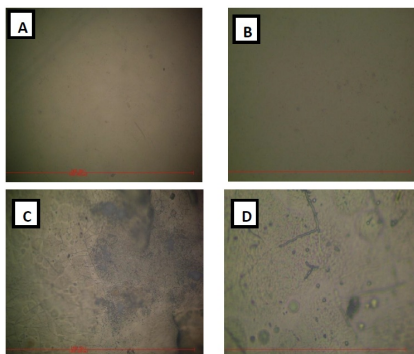
Dilihat dari Gambar 4 diketahui bahwa terjadi penurunan koefisien rejeksi pada masing-masing membran seiring dengan bertambahnya

pH larutan zat warna. Pada pH 4 diperoleh hasil koefisien rejeksi yang paling besar dengan adanya penurunan konsentrasi yang cukup besar untuk masing-masing membran kitosan-silika hasil sintesis. Adanya penurunan konsentrasi setelah permeat melewati membran menunjukkan bahwa membran telah berhasil melakukan dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue*. Persentase penurunan konsentrasi larutan zat warna diperoleh melalui perhitungan koefisien rejeksi.

Data Gambar 4 menunjukkan bahwa koefisien rejeksi membran pada pH 4 semakin besar seiring dengan bertambahnya massa silika yang ditambahkan pada membran. Hal ini sesuai dengan hipotesis bahwa penambahan silika akan semakin membuka pori-pori membran sehingga akan semakin banyak molekul zat warna yang terperangkap dalam membran karena semakin terbentuk struktur jala berupa rongga-rongga yang membuat molekul zat warna tertahan dalam membran. Penambahan silika juga berfungsi untuk menambah kestabilan membran karena jika kitosan berikatan dengan silika akan menghasilkan ikatan yang lebih kuat sehingga situs aktif yang dihasilkan akan semakin stabil karena matriks kitosan-silika yang dihasilkan lebih teratur (Arifiani; 2012). Variasi massa silika abu sekam padi yang ditambahkan berfungsi untuk mengetahui membran yang optimal untuk proses dekolorisasi larutan zat warna.

Membran kitosan-silika yang paling efektif terlihat pada komposisi kitosan-silika 1:2 terhadap larutan zat warna pada pH 4. Dilihat dari hasil uji *swelling* membran kitosan-silika 1:2 memiliki derajat *swelling* yang paling besar, sehingga memungkinkan zat warna lebih banyak diserap membran. Sedangkan untuk uji fluks membran kitosan-silika 1:2 memiliki nilai fluks yang paling tinggi dibandingkan dengan membran lainnya. Semakin besar fluks berarti pori dalam membran tersebut juga semakin besar. Hal ini sesuai dengan hipotesis bahwa penambahan silika akan semakin membuka pori membran sehingga akan semakin banyak molekul zat warna yang terperangkap dalam membran karena semakin terbentuk struktur jala berupa rongga-rongga yang membuat molekul zat warna tertahan dalam membran. Membran dengan komposisi terbaik ini kemudian dikarakterisasi morfologi permukaannya menggunakan *Digital CCD Microscope MS-804*. Analisis ini digunakan untuk mengetahui morfologi permukaan dari membran kitosan-

silika. Analisis dilakukan pada membran kitosan dan membran kitosan-silika 1:2. Morfologi permukaan membran kitosan dan kitosan-silika 1:2 dilakukan pada perbesaran 400 kali, dan 2400 kali. Morfologi permukaan membran kitosan dan kitosan-silika 1:2 dapat dilihat pada Gambar 5.

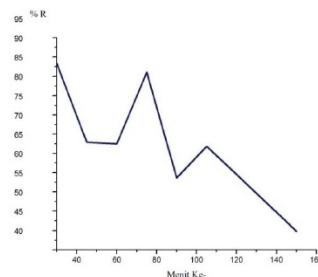


Gambar 5. (a) Permukaan membran kitosan perbesaran 400 kali; (b) Permukaan membran kitosan perbesaran 2400 kali; (c) Permukaan membran kitosan-silika 1:2 perbesaran 400 kali; (d) Permukaan membran kitosan-silika 1:2 perbesaran 2400 kali

Gambar 5 merupakan permukaan membran kitosan. Pada permukaan membran kitosan menunjukkan morfologi membran yang halus dan tidak terdapat gumpalan maupun cekungan. Pada membran kitosan tidak terlihat rengkahan atau celah yang besar seperti pada membran kitosan-silika 1:2. Pada penelitian Liu, *et al.* (2003) menyebutkan penambahan silika dalam membran kitosan berfungsi sebagai porogen dan membentuk celah pada membran. Permukaan membran kitosan-silika 1:2 memiliki permukaan yang kasar dan tidak homogen. Pada permukaan membran kitosan-silika 1:2 ditemukan gumpalan-gumpalan dan cekungan akibat adanya penambahan silika pada membran. Gumpalan dan cekungan ini menunjukkan adanya pengaruh penambahan silika. Selain itu pada membran kitosan-silika juga ditemukan pori yang terlihat seperti lingkaran-lingkaran. Hal ini dapat dibandingkan dengan membran kitosan-silika yang memberikan hasil koefisien rejeksi kecil yaitu membran kitosan-silika 1:0. Semakin banyak silika yang ditambahkan semakin selektif membran yang dihasilkan (Arifiani; 2012). Komposisi terbaik dengan koefisien rejeksi terbesar dihasilkan pada membran kitosan-silika 1:2

Membran yang telah digunakan untuk aplikasi, digunakan kembali untuk proses dekolorisasi larutan zat warna *Remazol Brilliant Blue* dengan konsentrasi yang sama. Proses pengulangan dilakukan sampai persen pengulangan konsentrasi zat warna didapatkan hasil yang berbeda secara signifikan. Proses pengulangan ini bertujuan untuk mengetahui kinerja membran untuk proses dekolorisasi zat warna. Data pengulangan membran kitosan-silika dapat dilihat pada Gambar 6.

rangan konsentrasi zat warna didapatkan hasil yang berbeda secara signifikan. Proses pengulangan ini bertujuan untuk mengetahui kinerja membran untuk proses dekolorisasi zat warna. Data pengulangan membran kitosan-silika dapat dilihat pada Gambar 6.



Gambar 6. Kinerja membran setelah digunakan secara berulang

Dari Gambar 6 dapat dilihat koefisien rejeksi membran kitosan-silika mengalami penurunan setelah digunakan secara berulang. Penurunan tajam terjadi pada menit ke-150 yaitu menghasilkan koefisien rejeksi sebesar 44,77%. Penurunan koefisien rejeksi ini mungkin diakibatkan terjadinya *fouling* atau penyumbatan pori membran sehingga filtrat masih banyak mengandung molekul zat warna. Dari Gambar 6 dapat disimpulkan bahwa membran kitosan-silika 1:2 dapat digunakan secara berulang untuk mendekolorisasi larutan zat warna *Remazol Brilliant Blue*. Penggunaan berulang sebanyak 8 kali atau setelah menit ke-150 merupakan penggunaan maksimal membran, karena pada penggunaan ke delapan koefisien rejeksi dari membran kitosan-silika 1:2 mengalami penurunan yang sangat tajam sampai kurang dari 50%. Menurut Handayani (2009) koefisien rejeksi untuk membran yang difungsikan sebagai filter tidak boleh kurang dari 50%. Sehingga dalam penelitian ini pada menit ke-150 membran sudah tidak dapat digunakan lagi sebagai media filtrasi larutan zat warna dengan baik.

Simpulan

Membran kitosan-silika dapat disintesis dengan menggunakan kitosan dan silika abu sekam padi sebagai sumber silika. Penambahan silika abu sekam padi dapat meningkatkan *swelling index*, permeabilitas, dan meningkatkan situs aktif membran kitosan. Membran kitosan-silika 1:2 merupakan membran yang paling baik untuk proses dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue* pada pH 4 dengan menghasilkan koefisien rejeksi sebesar 88,41%. Membran kitosan-silika hasil sintesis dapat digunakan untuk proses dekolorisasi zat warna *Remazol Brilliant Blue* secara berulang sebanyak delapan

kali pengulangan pada pH 4 atau selama 150 menit.

Daftar Pustaka

- Arifiani, N. 2012. *Sintesis Membran Kitosan-Silika dan Aplikasinya Untuk Filtrasi Air Sadah*. Skripsi Jurusan Kimia FMIPA UNNES: Semarang
- Chatterjee, S., Dae S. Lee., Min W. Lee., Seung H. Woo. 2009. Congo Red Adsorption from Aqueous Solution by Using Chitosan Hydrogel Beads Impregnated With Nanioic Surfactant. *Bioresource Technology* 100 (3862-3868): Republic of Korea
- Cregg, J., Sherri, L., Wiseman, B., Nicole, M., Pietrzak-Goetze, B., Martyn, R., David, B., Jaroch, M., Daniel, C., Ryan, J., Gilbert. 2009. *A Rapid, Quantitative method for Assesing Axonal Extension on Biomaterial Platforms*, Tissue Engineering, 15:00
- Dewi, R.S dan S. Lestari. 2006. Dekolorisasi Limbah Batik Tulis Menggunakan Jamur Indigenous Hasil Isolasi pada Konsentrasi Limbah yang Berbeda. *Jurnal Kimia UNSOED*: Purwokerto
- Hanafi, A dan A. Nandang, R. 2010. Studi Pengaruh Bentuk Silika dari Abu Ampas Tebu Terhadap Kekuatan Produk Keramik. *Jurnal Kimia Indonesia*. Vol.5 hal 35-38. Universitas Sebelas Maret: Surakarta
- Handayani, E. 2009. *Sintesa Membran Nano komposit Berbasis Nanopartikel Biosilika Dari Sekam Padi Dan Kitosan Sebagai Matriks Biopolimer*. Makalah Penelitian IPB: Semarang
- Harsono, H. 2002. Pembuatan Silika Amorf dari Limbah Sekam Padi. *Jurnal Ilmu Dasar*, Vol. 3 no. 2. 2002:98-103
- Huang, K.S., Jeng-Shian Cheng., Fun-Eu Lin., Shyh-Jer Lin. 2009. *Preparation and Properties of PAA-Chitosan/SiO₂ Hybrid Materials*. Kun Shan University Taiwan. 1-20
- Indrawati. 2008. *Dekolorisasi Larutan Remazol Brilliant Blue Menggunakan Ozon Hasil Elektrolisis*. Makalah Penelitian UNDIP: Semarang
- Kalpathy, U., A. Proctor., J. Shultz. 2000. A Simple Method for Production off Pure Silika From Rice Hull Ash. *Biores Tech.* 73, 257-262
- Kim, Se-Kwon. 2011. Chitin, Oligosacharides and Their Derivates. *Biological Activities and Application*. New York: Taylor and Francis Group
- Lin, E. 2007. *Study of The Mobility of Silver Ions in Chitosan Membrans*. Thesis University of Waterloo: Canada
- Liu, J., Xin Chen., Zheng Zhong Shao., Ping Zhou. 2003. Preparation and Characterization of Chitosan/Cu (II) Affinity Membran for Urea Adsorption. *Inc. J.Appl Polyn Sci*, 90: 1108-1112
- Nadarajah, K., 2005. *Development and Characterization of Antimicrobial Edibel Films from Crawfish Chitosan*. Disertasi Louisiana State University
- Nirmasari, Asty D. 2008. *Pengaruh pH terhadap Elektrokolorisasi Zat Warna Remazol Black B dengan Elektroda PbO₂*. Makalah Penelitian UNDIP: Semarang
- Noorikhlis, F., D.S. Widodo, I. Ismiyanto. 2008. Analisis Produk Elektrodestruksi Senyawa Penyusun Limbah Batik: Elektrolisis Larutan Remazol Black B. *Jurnal Kimia UNDIP*: Semarang
- Pierog, M., Magdalena G. D., Jadwika, O. C. 2009. Effect of Ionic Ceoss Linking Agent on Swelling Behaviour of Chitosan Hydrogel Membrans. *Progress on Chemistry and Application of Chitin and its*, Volume XIV
- Rasy, D. M., Nuryono., Sri, E.K. 2010. Sintesis dan Karakterisasi Silika Gel dari Abu Sekam PAdi yang Dimobilisasi Dengan 3-(Trimetoksisilil) 1-Propantiol. *Sains dan Terapan Kimia*, Vol. 4 No.2 150-167
- Ray, M., K. Pal., A. Anis and A. K. Banthia. 2010. Development and Characterization of Chitosan Based Polymeric Hydrogel Membrans. *Designed Monomers dan Polymers*, 13: 193-206