

SINTESIS PERMUKAAN KACA HIDROFOBİK MELALUI KOMBINASI TiO₂/ASAM STEARAT UNTUK APLIKASI MATERIAL *SELF-CLEANING*

Diana Vanda Wellia^{1*}, Febby Alvionita², Syukri Arief³

^{1,2,3}Laboratorium Kimia Material, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam,
Universitas Andalas

*[Email: nandadiana@sci.unand.ac.id](mailto:nandadiana@sci.unand.ac.id)

Abstrak

Permukaan kaca ultrahidrofobik berhasil dibuat menggunakan kombinasi TiO₂ dan asam stearat. TiO₂ berfungsi untuk meningkatkan kekasaran permukaan sedangkan asam stearat berfungsi sebagai zat modifikasi permukaan. Prekursor TiO₂ dibuat dengan metode perokso sol-gel, diikuti dengan modifikasi permukaan tersebut oleh asam stearat. Sudut kontak air maksimal yang diperoleh adalah 141° dengan komposisi 20 mL etanol dan 0,4 gram asam stearat (TS-2%). Analisis AFM menunjukkan kekasaran TS-2% lebih besar dibandingkan kaca murni yaitu sebesar 3,90 nm. Analisis FTIR juga menunjukkan adanya vibrasi regangan asimetris C=O (karbonil) pada bilangan gelombang 1697 cm⁻¹ yang membuktikan adanya interaksi kimia antara TiO₂ dan asam stearat. Hasil EDX dari TS-2% memperlihatkan adanya unsur titanium, karbon, dan oksigen yang menunjukkan adanya TiO₂/Asam stearat (TiO₂/C₁₈H₃₆O₂) pada permukaan hidrofobik. Sampel yang optimal (TS-2%) memiliki transparansi yang bagus dan sifat membersihkan sendiri yang baik dibandingkan dengan kaca murni.

Kata kunci: Permukaan ultrahidrofobik, TiO₂, lapis tipis, asam stearate, lapisan transparan

Abstract

The surface of ultrahydrophobic glass has been successfully prepared using the combination of TiO₂ and stearic acid. TiO₂ was used to increase the surface roughness, while stearic acid was a surface modifier. The peroxo sol-gel method has been used to synthesize TiO₂ precursors on the glass layer followed by modification of stearic acid. The maximal water contact angle of 141° has been obtained for the composition of 0.4 grams of stearic acid and 20 mL of ethanol (NKTS-2%). AFM analysis showed the roughness of NKTS-2% is 4,15 nm, which was greater than the pure glass. FTIR analysis also showed vibration of C=O (carbonyl) at 1697cm⁻¹ indicating the chemical interaction between TiO₂ and stearic acid. EDX spectrum analysis of TiO₂/stearic acid (TiO₂/C₁₈H₃₆O₂) showed the existence of titanium, oxygen, and carbon. The optimum sample (NKTS-2%) showed a good transparency and self-cleaning properties compared to pure glass.

Keywords: Ultrahydrophobic surface, TiO₂, thin film, stearic acid, transparent coating

Pendahuluan

Permukaan material yang bisa membersihkan sendiri dapat bersifat hidrofobik atau hidrofilik. Permukaan hidrofobik yang bekerja melalui efek lotus dapat dibuat dengan modifikasi kimia permukaan. Mekanisme ini meniru permukaan daun teratai, kotoran yang menempel di permukaan dihilangkan melalui aksi tetesan air yang bergulir dari permukaan hidrofobiknya dan material dapat dibersihkan dengan proses ini (Bhushan, 2012)(Extrand, 2002)(Marmur, 2004). Fenomena kekasaran permukaan dari permukaan padat menunjukkan kemampuan membersihkan diri yang sangat baik di

mana partikel yang terkontaminasi dapat dibersihkan oleh tetesan air yang bergulir atau meluncur di permukaan (Syafiq et al., 2019). Secara umum, jika sudut kontak air suatu permukaan padat $<90^\circ$ disebut sebagai permukaan hidrofilik. Ketika sudut kontak air $>90^\circ$, permukaan didefinisikan sebagai permukaan hidrofobik. Permukaan dengan sudut kontak air mendekati nol diklasifikasikan sebagai sangat (super) hidrofilik dan permukaan dengan sudut kontak air $>150^\circ$ biasanya dikategorikan sebagai (super) hidrofobik (Ganesh, Raut, Nair, & Ramakrishna, 2011). Istilah ultrahidrofobik telah digunakan untuk menggambarkan permukaan yang menunjukkan sudut kontak yang lebih tinggi atau lebih kecil dari 150° (Simpson, Hunter, & Aytug, 2015).

TiO₂ sering digunakan untuk memberikan kekasaran pada permukaan karena stabilitas kimianya dan tidak beracun. TiO₂ harus dimodifikasi secara kimia dengan reagen hidrofobik atau polimer hidrofobik untuk mencapai hidrofobisitas yang tinggi (Syafiq, Pandey, Balakrishnan, & Rahim, 2018). Ada banyak senyawa modifikasi yang digunakan pada proses pembuatan kaca ultrahidrofobik diantaranya *Aminopropyltriethoxysilane* dan *perfluorooctyltrimethoxysilane* (Latthe et al., 2019). Pada percobaan ini menggunakan asam stearat sebagai zat modifikasi permukaan yang meningkatkan hidrofobisitas permukaan kaca hidrofobik.

Beberapa peneliti menyiapkan lapisan superhidrofobik pada kaca yang transparan menggunakan silika berongga yang dimodifikasi partikel nano. Partikel nano silika berongga dimodifikasi oleh *aminopropyltriethoxysilane* yang dilapisi pada bidang kaca dan modifikasi kimia pada permukaan tiang diselesaikan oleh deposisi uap kimia dari *perfluorooctyltrimethoxysilane* (Latthe et al., 2019). Yang et al. menyiapkan lapisan transparan superhidrofobik dengan pelapisan partikel nano silika dimodifikasi fluorosilane pada kaca. Kaca adalah substrat yang umum untuk TiO₂ karena transparansi yang tinggi, daya lekat yang baik, tahan terhadap suhu kalsinasi tinggi, biaya yang relatif murah, dan tahan pada air limbah dengan pH rendah maupun tinggi (Hakki, Allahyari, Rahemi, & Tasbihi, 2018). Pada tahun 2014 Wang Yanfen mempersiapkan permukaan kaca dengan lapisan TiO₂ dan asam stearat (Wang, Li, Liu, Xu, & Ge, 2014). Asam stearat dipilih karena bisa berfungsi sebagai zat hidrofobisasi permukaan dan harganya yang murah.

Penelitian ini bertujuan untuk membuat permukaan kaca yang bersifat hidrofobik

dengan memodifikasi sifat kimia permukaan menggunakan asam stearat yang dilarutkan dalam etanol dengan menggunakan metode yang ramah lingkungan. Penelitian ini diharapkan dapat menghasilkan permukaan kaca hidrofobik yang memiliki sifat pembersih diri (*self-cleaning*) yang baik.

Metode

Alat dan Bahan

Alat yang digunakan pada penelitian ini adalah peralatan gelas, oven vakum, *magnetic stirrer*, indikator universal, timbangan analitis dan *furnace*. Instrumen karakterisasi yang digunakan adalah FTIR (*Perkin Elmer*), dan *USB Digital Microscope*.

Bahan yang digunakan adalah titanium tetraklorida (TiCl_4), amonium hidroksida (NH_4OH), hidrogen peroksida (H_2O_2), akuades (H_2O), aseton ($\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$), asam stearat ($\text{C}_{18}\text{H}_{36}\text{O}_2$), isopropil alkohol ($\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$), etanol ($\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$), asam sulfat (H_2SO_4) dan natrium hidroksida (NaOH).

Sintesis Prekursor TiO_2

36 mL TiCl_4 ditambahkan ke dalam 300 mL akuades dalam penangas es sambil diaduk. Setelah 30 menit, pH diatur menjadi 7 dengan penambahan larutan amonia. Selanjutnya larutan diaduk selama 24 jam. Campuran dipisahkan filtratnya dan endapannya dicuci dengan akuades hingga tidak ada lagi ion Cl^- . Kemudian endapan yang diperoleh ditambahkan dengan 80 mL akuades diikuti dengan penambahan 28 mL H_2O_2 sambil diaduk. Campuran kemudian diaduk selama 4 jam hingga terbentuk larutan prekursor TiO_2 yang berwarna kuning transparan (Xu et al., 2011).

Persiapan Lapisan TiO_2 pada Substrat Kaca

Substrat yang digunakan pada penelitian ini adalah kaca preparat komersil dengan ukuran (76,2 mm x 25,4 mm x 1 mm). Spesimen kaca yang digunakan dicuci terlebih dahulu dan dibilas kembali dengan aseton, isopropilalkohol, dan etanol. Kaca yang telah bersih dipanaskan pada suhu 500°C selama 1 jam. Kaca *pre-treatment* yang telah dibersihkan dicelupkan kedalam larutan prekursor TiO_2 selama 30 detik dilanjutkan

dengan pengeringan selama 5 menit menggunakan oven pada suhu 90°C. Proses pencelupan dan pengeringan ini dilakukan sebanyak 5 kali.

Persiapan Permukaan Ultrahidrofobik

Substrat kaca yang telah dilapisi dengan TiO₂ dikeringkan dalam oven vakum selama 1 jam pada suhu 120° kemudian direndam dalam asam stearat selama 6 jam dengan variasi konsentrasi 0.5%, 1%, 1.5%, 2%, dan 2.5% dalam etanol. Selanjutnya, substrat kaca yang telah dimodifikasi dibilas dengan etanol dan dikeringkan dalam oven vakum selama 2 jam pada suhu 60°C. Masing-masing sampel disingkat dengan TS-0.5% dimana T artinya TiO₂, S artinya asam stearat dan 0.5% artinya variasi konsentrasi asam stearat. Sampel lainnya disingkat dengan TS-1%, TS-1.5%, TS-2%, TS-2.5%.

Karakterisasi

Karakterisasi yang dilakukan terhadap sampel adalah pengukuran sudut kontak air, FTIR (Fourier Transmission Infra Red) dan AFM (Atomic Force Microscope). Karakterisasi dilakukan pada beberapa variasi sampel kaca hasil modifikasi, sedangkan sampel kontrol yang digunakan yaitu kaca murni tanpa modifikasi lapisan, kaca terlapis TiO₂, dan kaca terlapis asam stearat saja.

Pengukuran Sudut Kontak Air

Air ditetaskan ke atas permukaan substrat kaca hasil modifikasi untuk mengukur sudut kontak, selanjutnya pengambilan gambar dilakukan dengan menggunakan *USB Digital Microscope* pada bulir air yang terbentuk. Gambar yang dihasilkan kemudian diolah menggunakan sistem perangkat lunak khusus untuk mengetahui sudut kontak air secara akurat. Hasil yang diperoleh dibandingkan dengan sampel kontrol.

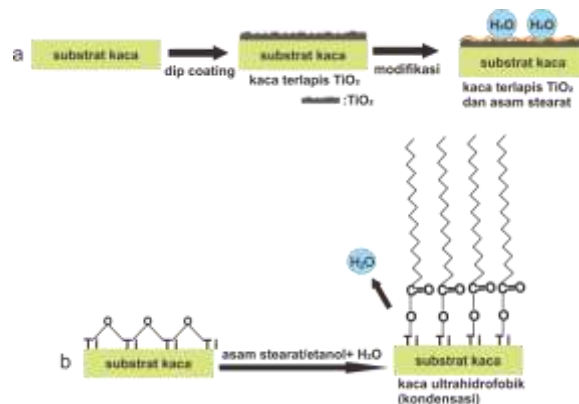
Uji Sifat *Self-cleaning*

Pengujian sifat *self-cleaning* dilakukan dengan menaburkan pengotor ke atas permukaan kaca ultrahidrofobik, kemudian air dialiri diatas permukaan material substrat tersebut dan selanjutnya dilihat bagaimana kemampuan *self-cleaning*nya. Material substrat kaca murni digunakan sebagai pembanding.

Hasil dan Pembahasan

Mekanisme Terbentuknya Permukaan Kaca Ultrahidrofobik

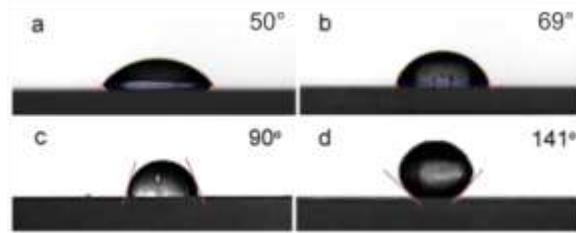
Kaca ultrahidrofobik terbentuk dari pelapisan TiO_2 yang kemudian dimodifikasi menggunakan asam stearat ($\text{C}_{18}\text{H}_{36}\text{O}_2$) dengan mekanisme yang dapat dilihat pada gambar 1. Pada permukaan, TiO_2 berinteraksi dengan molekul air di udara sehingga terikat OH. Saat direndam dengan asam stearat selama 6 jam permukaan mengalami fisorpsi dan kemudian mengalami kondensasi melepaskan H_2O (Pratiwi, Zulhadjri, Arief, & Wellia, 2020).



Gambar 1. Mekanisme terbentuknya lapisan ultrahidrofobik

Pengukuran Sudut Kontak Air

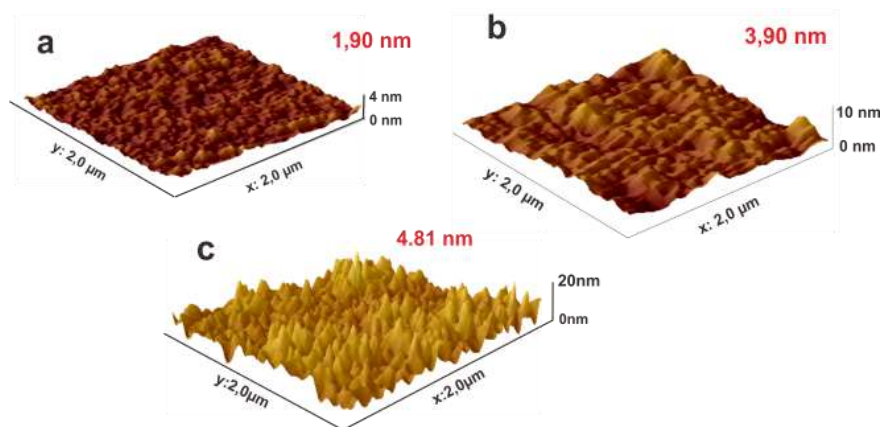
Kaca berlapis TiO_2 dengan modifikasi asam stearat 2% menghasilkan peningkatan hidrofobisitas dengan sudut kontak air sebesar 141° . Pada penelitian ini asam stearat dengan konsentrasi 2% merupakan konsentrasi optimum. Hal ini dikarenakan bahwa sifat keterbasahan permukaan padatan melibatkan kekasaran permukaan dan modifikasi dengan bahan yang memiliki energi permukaan rendah. Perubahan dari permukaan hidrofilik menjadi permukaan ultrahidrofobik disebabkan oleh kombinasi peningkatan kekasaran oleh struktur nano TiO_2 dan penurunan energi permukaan oleh asam stearat (Wang et al., 2014).



Gambar 2. Perbandingan sudut kontak air: (a) kaca murni (b) kaca yang dilapisi TiO_2 (c) kaca yang dilapisi asam stearat (d) kaca yang dilapisi TiO_2 /Asam Stearat 2%

Kekasaran Permukaan

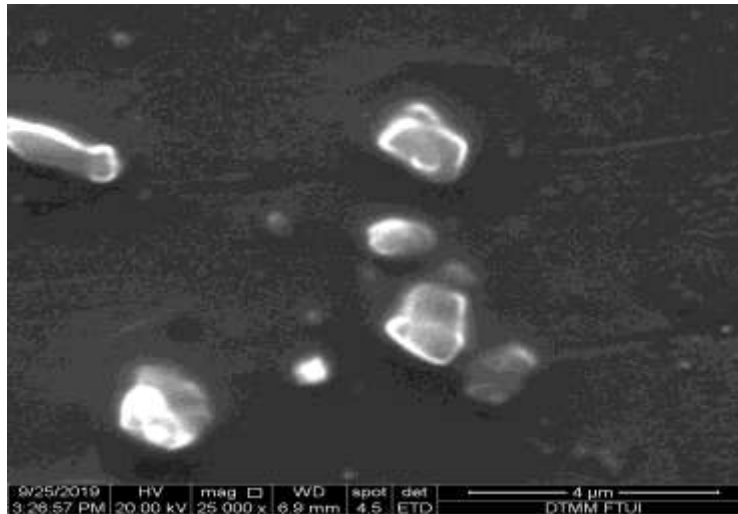
Permukaan kaca murni memiliki kekasaran sebesar 1,90 nm dan kekasaran TS-2% sebesar 3,90 nm. Lapisan TiO_2 pada permukaan berfungsi untuk memberikan kekasaran pada permukaan kaca dengan nilai kekasarannya sebesar 4,81 nm. Ketika lapisan TiO_2 dilapisi dengan asam stearat maka kekasaran permukaan akan berkurang karena efek dari asam stearat yang memperhalus permukaan dan nilai kekasaran berkurang menjadi 3,90 nm. Kekasaran dapat membentuk celah yang dapat memerangkap udara sehingga mampu menghasilkan permukaan yang bersifat hidrofobik (Cassie, 1944).



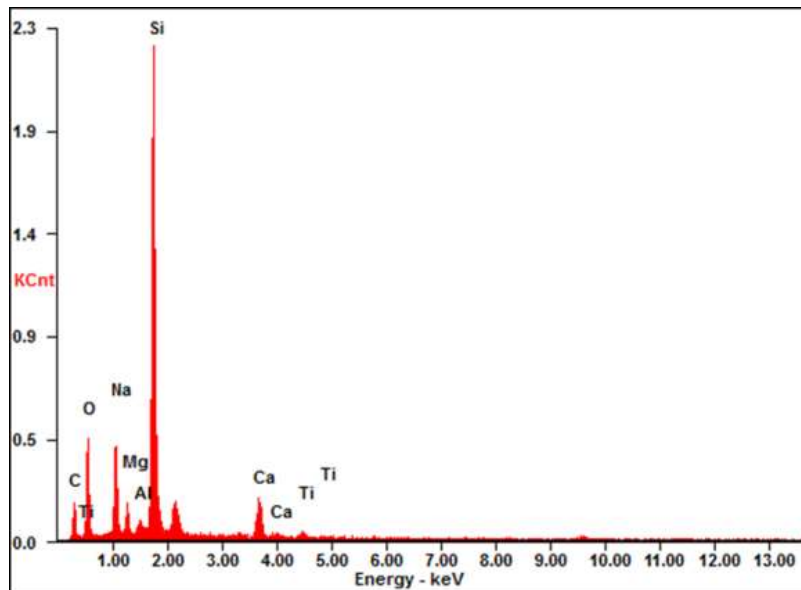
Gambar 3. Kekasaran permukaan (a) kaca murni (b) TS-2% (c) TiO_2

Morfologi Kaca Ultrahidrofobik

Gambar 4 adalah hasil FESEM/EDX kaca ultrahidrofobik memperlihatkan adanya asam stearat yang terlapisi dan dikonfirmasi oleh EDX yang menunjukkan adanya unsur titanium, karbon, dan oksigen.



(a)



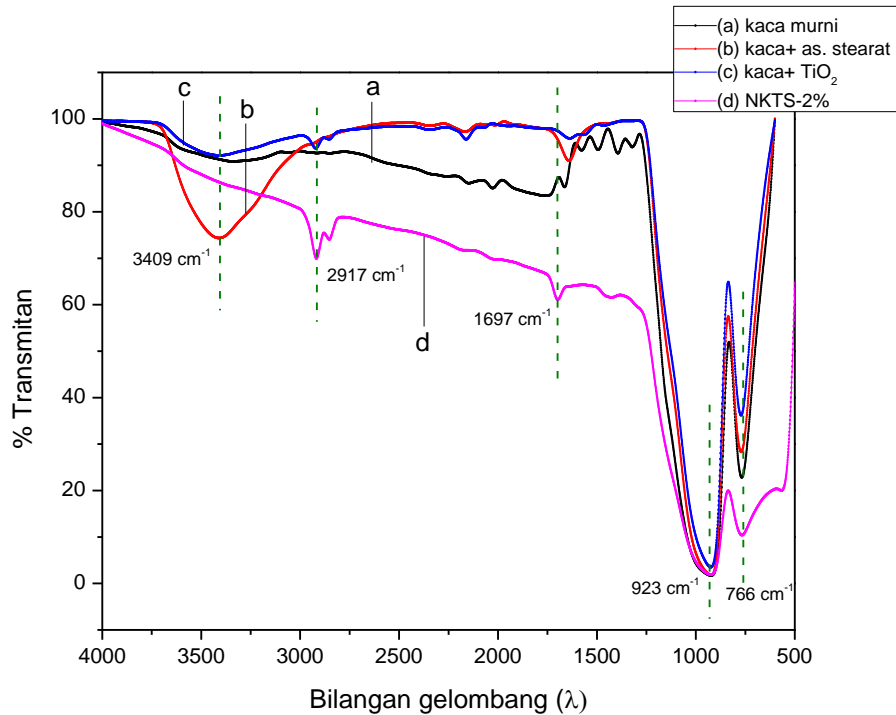
(b)

Gambar 4. (a) Morfologi permukaan TS-2%, (b) Spektrum EDX TS-2%

Hasil *Fourier Transmission Infra Red (FTIR)*

Spektrum FTIR dari kaca murni, kaca terlapis TiO_2 , kaca terlapis asam stearat dan TiO_2 /Asam Stearat 2% dapat dilihat pada Gambar 5. Berbeda dari spektrum FTIR kaca murni, spektrum FTIR dari TS-2% menunjukkan serapan pada bilangan gelombang sekitar 2917cm^{-1} yang merupakan bilangan gelombang spesifik untuk peregangan C-H dan juga pada bilangan gelombang 1697cm^{-1} yang merupakan indikasi dari vibrasi

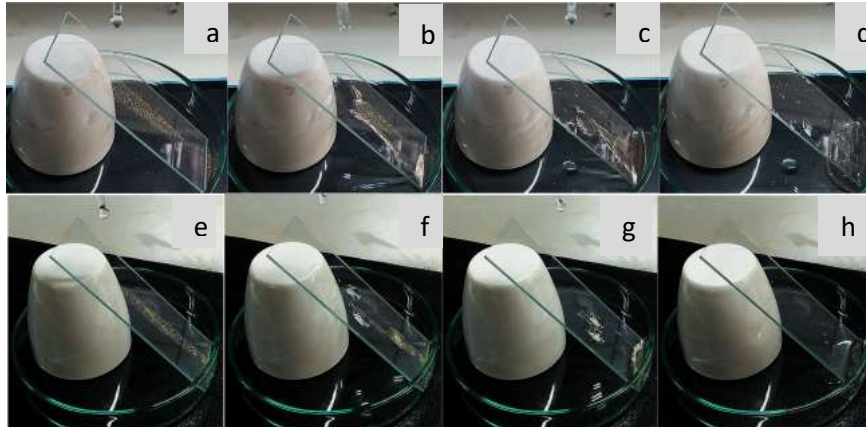
regangan asimetris C=O (karbonil). Hal ini mengkonfirmasi adanya interaksi kimia dari lapisan asam stearat dengan TiO₂ pada permukaan kaca ultrahidrofobik. Pada kaca terlapis asam stearat juga terlihat adanya vibrasi regangan pada 3409 cm⁻¹ yang merupakan bilangan gelombang spesifik dari OH yang merupakan gugus kepala asam stearat. (Wan, Sun, Liu, & Qi, 2012) (Liao et al., 2018).



Gambar 5. Spektrum FTIR sampel

Sifat *Self-cleaning*

Hasil uji sifat *self-cleaning* diperlihatkan pada gambar 6. Berdasarkan gambar 6 (e-h) yang merupakan TS-2%, air yang diteteskan membentuk buliran air berbentuk bulat pada permukaan kaca sehingga berpotensi untuk aplikasi material *self-cleaning* yang mampu membersihkan pengotor dari permukaan kaca (Wang et al., 2014). Sebaliknya kaca murni pada gambar 6 (a-d) buliran air tidak berbentuk bulat pada permukaan kaca sehingga tidak berpotensi untuk aplikasi material *self-cleaning*. Hasil ini menunjukkan bahwa TS-2% memiliki sifat *self-cleaning* yang baik dibandingkan kaca murni, hal ini dibuktikan dengan cepat dan mudahnya permukaan sampel TS-2% dalam menghilangkan pengotor seperti pasir setelah dialiri air (kaca murni (1-4) dan TS-2% (a-d)).



Gambar 6. Uji Sifat *Self-Cleaning* kaca murni dan sampel TS-2%

Sintesis kaca hidrofobik menggunakan TiO_2 /asam stearat, dengan metoda sintesis TiO_2 adalah metode sol-gel biasa, telah dilaporkan oleh Yong Wan et.al. Kaca hidrofobik yang dihasilkan memiliki sudut kontak air 93° . Dalam hal ini Yong Wan et.al tidak menguji sifat *self-cleaning*nya (Yong Wan, 2012). Selanjutnya, Yanfeng Wang et.al melakukan sintesis kaca hidrofobik dengan sistem yang sama tetapi dalam hal ini dilakukan modifikasi terhadap bentuk partikel TiO_2 yang disintesis sehingga sudut kontak air kaca hidrofobik yang dihasilkan bisa mencapai 157° . Dalam hal ini, sifat *self-cleaning* nya juga tidak diujikan (Yanfeng Wang, 2014).

Kesimpulan

Permukaan kaca ultrahidrofobik berhasil dibuat dari pembentukan lapisan TiO_2 yang dimodifikasi dengan asam stearat. Jumlah asam stearat yang paling optimal dalam meningkatkan hidrofobisitas pada penelitian ini adalah 0,4 g asam stearat dalam 20 mL etanol (2%). Dalam hal ini kaca hidrofobik yang dihasilkan memiliki sudut kontak air 141° . Evaluasi sifat *self-cleaning* dilakukan terhadap kaca ultrahidrofobik tersebut. Hasilnya menunjukkan pengotor yang diberikan pada kaca juga dapat dibersihkan dengan baik yang menunjukkan kaca ultrahidrofobik memiliki sifat *self-cleaning*.

Ucapan Terima Kasih

Terima kasih kepada Jurusan Kimia, FMIPA Universitas Andalas atas sarana dan prasarana yang diberikan dalam melaksanakan penelitian ini.

Daftar Referensi

- Bhushan, B. (2012). Bioinspired structured surfaces. *Langmuir*, 28(3), 1698–1714. <https://doi.org/10.1021/la2043729>
- Cassie, B. D. (1944). *wettability Of porous surfaces*,. (5), 546–551.
- Extrand, C. W. (2002). Model for contact angles and hysteresis on rough and ultraphobic surfaces. *Langmuir*, 18(21), 7991–7999. <https://doi.org/10.1021/la025769z>
- Ganesh, V. A., Raut, H. K., Nair, A. S., & Ramakrishna, S. (2011). A review on self-cleaning coatings. *Journal of Materials Chemistry*, 21(41), 16304–16322. <https://doi.org/10.1039/c1jm12523k>
- Hakki, H. K., Allahyari, S., Rahemi, N., & Tasbihi, M. (2018). The role of thermal annealing in controlling morphology, crystal structure and adherence of dip coated TiO₂ film on glass and its photocatalytic activity. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 85(February), 24–32. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2018.05.031>
- Latthe, S. S., Sutar, R. S., Kodag, V. S., Bhosale, A. K., Kumar, A. M., Kumar Sadasivuni, K., ... Liu, S. (2019). Self – cleaning superhydrophobic coatings: Potential industrial applications. *Progress in Organic Coatings*, 128(December 2018), 52–58. <https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2018.12.008>
- Liao, T.-W., Verbruggen, S. W., Claes, N., Yadav, A., Grandjean, D., Bals, S., & Lievens, P. (2018). TiO₂ Films Modified with Au Nanoclusters as Self-Cleaning Surfaces under Visible Light. *Nanomaterials (Basel, Switzerland)*, 8(1), 1–9. <https://doi.org/10.3390/nano8010030>
- Marmur, A. (2004). The lotus effect: Superhydrophobicity and metastability. *Langmuir*, 20(9), 3517–3519. <https://doi.org/10.1021/la036369u>
- Pratiwi, N., Zulhadjri, Arief, S., & Wellia, D. V. (2020). A Facile Preparation of Transparent Ultrahydrophobic Glass via TiO₂/Octadecyltrichlorosilane (ODTS) Coatings for Self-Cleaning Material. *ChemistrySelect*, 5(4), 1450–1454. <https://doi.org/10.1002/slct.201904153>
- Simpson, J. T., Hunter, S. R., & Aytug, T. (2015). Superhydrophobic materials and coatings: A review. *Reports on Progress in Physics*, 78(8). <https://doi.org/10.1088/0034-4885/78/8/086501>
- Syafiq, A., Pandey, A. K., Balakrishnan, V., & Rahim, N. A. (2018). Study on self-cleaning performance and hydrophobicity of TiO₂/silane coatings. *Pigment and Resin Technology*. <https://doi.org/10.1108/PRT-02-2018-0010>
- Syafiq, A., Vengadaesvaran, B., Rahim, N. A., Pandey, A. K., Bushroa, A. R., Ramesh, K., & Ramesh, S. (2019). Transparent self-cleaning coating of modified polydimethylsiloxane (PDMS) for real outdoor application. *Progress in Organic*

- Coatings*, 131(December 2018), 232–239.
<https://doi.org/10.1016/j.porgcoat.2019.02.020>
- Wan, Y., Sun, B., Liu, W., & Qi, C. (2012). Tribological performance of fatty acid modification of sol-gel TiO₂ coating. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 61(3), 558–564. <https://doi.org/10.1007/s10971-011-2659-5>
- Wang, Y., Li, B., Liu, T., Xu, C., & Ge, Z. (2014). Controllable fabrication of superhydrophobic TiO₂ coating with improved transparency and thermostability. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 441, 298–305. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2013.09.023>
- Xu, Q. C., Wellia, D. V., Yan, S., Liao, D. W., Lim, T. M., & Tan, T. T. Y. (2011). Enhanced photocatalytic activity of C-N-codoped TiO₂ films prepared via an organic-free approach. *Journal of Hazardous Materials*, 188(1–3), 172–180. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.01.088>
- Zhu, J., Liu, B., Li, L., Zeng, Z., Zhao, W., Wang, G., & Guan, X. (2016). Simple and Green Fabrication of a Superhydrophobic Surface by One-Step Immersion for Continuous Oil/Water Separation. *Journal of Physical Chemistry A*, 120(28), 5617–5623. <https://doi.org/10.1021/acs.jpca.6b06146>