

PENGARUH pH PADA REDUKSI Au(III) MENJADI Au DALAM GEL METASILIKAT

Muhamad Agus Radiansyah, Mohammad Misbah Khunur*, Yuniar Ponco Prananto

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya
Jl. Veteran Malang 65145

*Alamat korespondensi, Tel : +62-341-575838, Fax : +62-341-575835
Email: mmisbahkhunur@yahoo.com

ABSTRAK

Kristal tunggal emas dapat disintesis dengan metode gel metasilikat. Gel metasilikat memiliki beberapa kelebihan yaitu sederhana, mudah dilakukan pada suhu kamar dan memiliki kristalinitas yang lebih baik dibandingkan gel lainnya seperti agar, gelatin, lempung dan poliakrilamida. Kristalinitas gel metasilikat memiliki struktur tautan silang (Si-O-Si) yang mampu membentuk polimer dan memiliki rongga-rongga pada gel sebagai ruang yang kondusif untuk pertumbuhan kristal. Penelitian ini dilakukan untuk mensintesis kristal tunggal emas dalam gel metasilikat dan mengetahui pengaruh pH awal larutan gel terhadap kristal hasil sintesis. Hasil sintesis menunjukkan bahwa semakin tinggi pH larutan awal pembentukan gel, semakin besar massa kristal yang diperoleh. pH optimum larutan awal pembentukan gel adalah 5,5 dan efisiensi massa kristal hasil sintesis sebesar 29,78%.

Kata kunci: gel metasilikat, kristal tunggal emas, pH

ABSTRACT

Gold single crystals can be synthesized through metasilicate gel method. The metasilicate gel has several advantages such as simplicity, conductable at room temperature, and better crystallinity compared to agar, gelatin, clay and polyacrylamide. The crystallinity of metasilicate gel has cross link structure (Si-O-Si) that is capable of forming polymerization with cavities on gel as conducive space for crystal growth. The research is conducted to synthesize gold single crystal in metasilicates gel and to determine the effect of initial pH of the gel solution to the synthesized crystal. The results showed that the higher the initial pH of gel formation, the greater the mass of crystal is obtained. Thus, the optimal initial pH is 5.5 and the mass efficiency of the synthesized crystal is 29.78%.

Keywords: metasilicates gel, gold single crystal, pH

PENDAHULUAN

Kristal tunggal emas memiliki konduktivitas yang sangat baik sehingga sering digunakan pada teknologi pembuatan kabel mikro (nanowire) [1]. Sintesis kristal tunggal emas dapat dilakukan dengan berbagai metode antara lain teknik gel, lelehan *Czochralski*, metode *Bridgman-Stockbarger*, metode *floating zone*, metode pertumbuhan larutan, metode hidrotermal, dan metode sublimasi [2].

Teknik gel digunakan untuk mendapat kristal tunggal emas dikarenakan pertumbuhan kristal tunggal dengan metode gel relatif sederhana, mudah dilakukan pada suhu kamar dan memiliki tingkat kejemuhan yang sedang [3].

Gel yang digunakan juga mempengaruhi pada kristal yang dihasilkan, gel metasilikat merupakan gel yang kondusif untuk pertumbuhan kristal tunggal emas dibandingkan dengan gel lainnya seperti agar, gelatin, lempung/bentonit atau poliakrilamida, karena gel metasilikat memiliki kerangka Si-O-Si yang relatif stabil dan tidak bereaksi dengan produk [4,5,6].

Sintesis kristal tunggal emas dengan metode gel metasilikat pernah dilakukan yaitu dengan cara mereduksi kompleks $[AuCl_4]^-$ dalam gel dengan larutan supernatan asam oksalat pada suhu kamar. Pada penelitian tersebut diperoleh pH optimum 4,5 dan konsentrasi optimum asam oksalat 0,30M dengan kemurnian sebesar 89,42% [7]. Sementara itu, reduksi kompleks $[AuCl_4]^-$ pada permukaan silikat (kuarsa, piropilit, feldspar) pernah dilaporkan oleh Mohammad Nejad dkk [8], dimana penelitian tersebut menginformasikan bahwa kompleks $[AuCl_4]^-$ dapat direduksi oleh hidrogen atau radikal Si pada situs cacat permukaan silikat.

Pertumbuhan kristal tunggal dalam gel sangat dipengaruhi oleh keasaman larutan gel, konsentrasi supernatan, suhu, dan lama pertumbuhan [9]. Berdasarkan uraian di atas maka penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh pH pada reduksi Au(III) menjadi Au dalam gel metasilikat tanpa penambahan supernatan sebagai reduktor dalam rangka efisiensi sintesis kristal tunggal emas dalam gel metasilikat.

METODE PENELITIAN

Bahan dan alat

Bahan yang akan digunakan dalam penelitian ini mempunyai derajat kemurnian pro analisis (pa). Bahan-bahan tersebut antara lain; logam emas 24 karat, padatan Na_2SiO_3 95%, padatan NaOH, larutan HCl 37%, larutan HNO_3 65%, dan akuabides.

Alat yang akan digunakan dalam penelitian ini adalah tabung gelas tunggal, pH meter (ORION 42A), pengaduk magnet, pipet volume, pipet ukur, karet hisap, spatula, pipet tetes, gelas kimia, neraca analitik (METTLER PE 300), desikator, botol semprot, oven (HERAUS KR170E), kaca pembesar, alumunium foil, difraktometer sinar-X (PANalytical X'pert Pro), dan SEM-EDAX (FEI Inspect S50).

Prosedur preparasi larutan gel metasilikat dan larutan tetrakloroaurat (III)

Preparasi larutan gel metasilikat dengan variasi pH 4,0; 4,5; 5,0 dan 5,5 dilakukan dengan cara menuangkan larutan $[AuCl_4]^-$ 0,6 M masing-masing sebanyak 1 mL kedalam

empat buah gelas kimia 250 mL yang berisi 10 mL HCl 1M. Masing-masing gelas kimia yang berisi larutan $[AuCl_4]^-$ 0,6 M tersebut ditambahkan larutan natrium metasilikat 1,72 M hingga diperoleh masing-masing variasi pH tersebut, pH diukur dengan pH-meter dan selama proses tersebut diaduk dengan menggunakan pengaduk magnetik. Masing-masing larutan tersebut dimasukkan ke dalam tabung tunggal (*single diffusion*). Selanjutnya masing-masing tabung reaksi tersebut ditutup dengan alumunium foil dan disimpan pada suhu kamar serta dihindarkan dari goncangan hingga terbentuk gel dan sekaligus kristal tunggal emas selama 3 minggu.

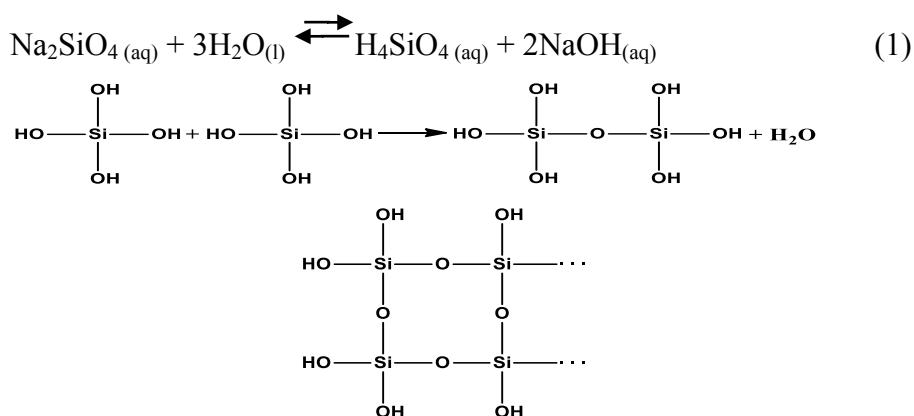
Pemisahan dan karakterisasi kristal hasil sintesis

Pemisahan kristal hasil sintesis dilakukan dengan cara melarutkan gel dengan larutan NaOH 2M dan dipisahkan dengan sentrifus dengan kecepatan maksimal 6000 rpm hingga terjadi pemisahan yang sempurna. Selanjutnya larutan NaOH yang terdapat dibagian atas dipisahkan dan residu dicuci dengan akuabides sebanyak 3 kali untuk menghilangkan sisa NaOH. Kristal tunggal emas hasil sintesis ditimbang massanya dan dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X dan SEM-EDAX.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembuatan gel metasilikat dan sintesis kristal tunggal emas

Gel metasilikat dihasilkan dari pelarutan natrium metasilikat (Na_2SiO_3) dalam akuabides. Dalam akuabides, Na_2SiO_3 akan terdispersi menjadi senyawa asam monosilikat (H_4SiO_4), dimana asam monosilikat ini akan bergabung dengan asam monosilikat lainnya membentuk suatu polimer Si-O-Si seperti pada gambar sebagai berikut.



Gambar 1. Mekanisme reaksi polimerisasi gel metasilikat

Pengkondisian pH larutan awal pembentukan gel dilakukan dengan penambahan larutan asam klorida sehingga diperoleh larutan dengan pH 4,0; 4,5; 5,0; 5,5. Setelah 3

minggu berikutnya, kristal dalam gel yang berwarna kuning keemasan dianalisis dan hasilnya ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Massa kristal hasil sintesis pada berbagai variasi pH larutan awal pembentukan gel

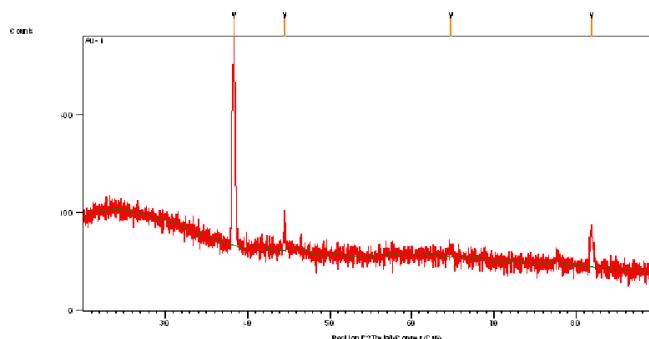
pH larutan awal pembentukan gel	Massa kristal hasil sintesis (g)	Efisiensi massa kristal hasil sintesis (%)
4,0	0,0076	6,43
4,5	0,0101	8,54
5,0	0,0194	16,42
5,5	0,0352	29,78

Pada pH awal pembentukan gel kurang dari 4,0 diperoleh gel metasilikat yang relatif lebih lunak karena penambahan asam secara berlebih. Sedangkan pada pH 5,5 gel yang terbentuk relatif keras, karena jumlah asam yang ditambahkan tidak menghasilkan molekul air sebagai produk samping, sehingga gel terbentuk sangat cepat. Pada pH 5,5 diperkirakan tingkat kejemuhan gel relatif optimum untuk pembentukan inti kristal Au.

Pada saat gel mulai mencapai tingkat kejemuhan yang sesuai, maka reduksi Au^{3+} menjadi $\text{Au}(0)$ dapat terjadi. Au^{3+} yang tereduksi menjadi $\text{Au}(0)$ disebabkan adanya interaksi antara kompleks $[\text{AuCl}_4]^-$ dengan silika, sebagaimana penelitian yang pernah dilaporkan oleh Mohammadnejad dkk [8]. Pada penelitian tersebut dilaporkan adanya gaya tarik menarik secara elektrostatis antara kompleks emas klorida dengan permukaan silikat yang telah diaktifasi secara mekanik kimia. Namun dalam penelitian ini masih diragukan adanya interaksi kompleks $[\text{AuCl}_4]^-$ pada permukaan silikat, karena pada penelitian ini tidak dilakukan aktivasi secara mekanik kimia terhadap padatan Na_2SiO_3 yang digunakan dalam pembuatan gel metasilikat.

Difraksi sinar-X

Karakterisasi menggunakan sinar-X bertujuan untuk uji kualitatif kristal hasil sintesis yaitu mengetahui keberadaan kristal tunggal emas .



Gambar 2. Difraktogram sinar-X kristal hasil sintesis

Berdasarkan difraktogram kristal hasil sintesis yang ditunjukkan pada Gambar 2, hanya terdapat empat puncak yang muncul pada beberapa sudut difraksi tertentu jika dibandingkan dengan sembilan puncak yang muncul pada difraktogram kristal tunggal emas standar JCPDS. Hal ini disebabkan pada sudut difraksi tertentu masih terdapat beberapa pengotor-pengotor yang masih tersisa pada saat pemisahan. Hasil tersebut diperkuat oleh data analisa SEM-EDAX (Gambar 3 dan 4) yang menunjukkan masih adanya pengotor kristal yang dihasilkan.

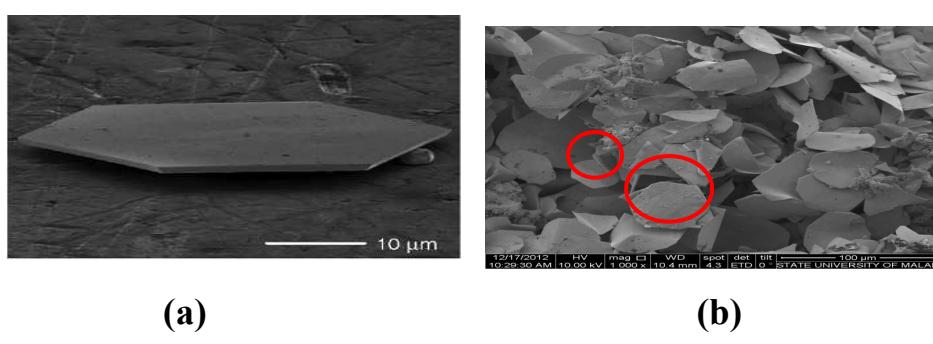
Tabel 2. Perbandingan jarak antar bidang difraksi (d), besar intensitas (I) dan sudut difraksi (2θ) kristal tunggal hasil sintesis terhadap kristal tunggal emas standar JCPDS untuk beberapa puncak utama difraktogram

Puncak	Kristal Hasil Sintesis			JCPDS (01-071-4614)			
	I(%)	2θ	$d(\text{\AA})$	I(%)	2θ	$d(\text{\AA})$	h k l
1	100,00	38,3646	2,34631	999	38,1097	2,36136	1 1 1
2	5,37	44,5558	2,03360	457	44,2932	2,04500	2 0 0
3	1,73	64,7342	1,44008	238	64,4343	1,44603	2 2 0
4	8,63	81,8677	1,17569	67	81,5279	1,18068	2 2 2

Berdasarkan Tabel 2, kristal hasil sintesis memiliki perbandingan (d) dan (2θ) yang relatif sama dengan kristal tunggal emas standar JCPDS. Hal ini terbukti dari perhitungan jarak antar bidang difraksi (d) menggunakan persamaan Bragg dan perhitungan dengan (h k l) pada JCPDS. Nilai jarak antar bidang difraksi (d) yang diperoleh hampir sama (selisih 0,004 contoh perhitungan $2\theta = 81,8677$). Berdasarkan hal tersebut dapat dikatakan bahwa kristal hasil sintesis adalah kristal tunggal emas.

SEM-EDAX

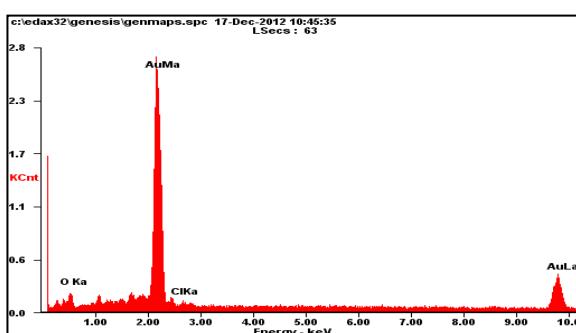
Untuk mengetahui ukuran dan morfologi kristal hasil sintesis, maka dilakukan karakterisasi dengan SEM-EDAX seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3 sebagai berikut:



Gambar 3. Bentuk permukaan kristal hasil sintesis menggunakan SEM. Gambar (a) kristal tunggal emas yang pernah dilaporkan oleh Muzikar, *et. al.* (2006) dan gambar (b) kristal tunggal emas hasil sintesis

Berdasarkan Gambar 3, kristal hasil sintesis berbentuk lembaran pipih dan masih terdapat beberapa pengotor-pengotor yang diduga merupakan sisa gel yang belum terpisahkan

secara sempurna maupun endapan Au(OH)₃ yang terbentuk pada saat pemisahan kristal hasil sintesis dalam gel metasilikat. Hal tersebut ditandai dengan munculnya intensitas atom O pada spektra EDAX sebesar 5,23%. Namun tampak pada gambar tersebut sebagian besar bentuk dari permukaan kristal hasil sintesis relatif sama dengan kristal tunggal emas yang pernah dilaporkan oleh Muzikar, *et. al.* [10], maupun Abduh [7].



Gambar 4. Spektra EDAX kristal hasil sintesis

Gambar 4 menunjukkan spektra EDAX komposisi kristal hasil sintesis. Berdasarkan gambar tersebut, intensitas logam Au sangat tinggi yaitu 94,45%. Hal ini mengindikasikan tingkat kemurnian kristal hasil sintesis tinggi. Selain itu terdapat beberapa pengotor yang ditandai dengan adanya intensitas unsur O yang muncul sebesar 5,23% yang diduga merupakan unsur pada senyawa kompleks Au(OH)₃ yang terbentuk pada saat pemisahan kristal hasil sintesis dengan gel metasilikat.

KESIMPULAN

Reduksi Au(III) menjadi Au(0) dalam gel metasilikat dipengaruhi oleh pH larutan awal pembentukan gel. Kondisi optimum pH larutan awal pembentukan gel metasilikat adalah 5,5 dengan efisiensi massa kristal hasil sintesis sebesar 29,78%. Karakterisasi kristal hasil sintesis yang dilakukan secara kualitatif menggunakan difraktometer sinar-X menunjukkan bahwa jarak antar bidang (*d*) sesuai dengan sistem kristal kubus dari kristal standar JCPDS, sehingga dapat dikatakan kristal hasil sintesis adalah kristal tunggal emas. Karakterisasi kristal hasil sintesis menggunakan SEM menunjukkan bahwa morfologi kristal hasil sintesis memiliki kemiripan yang sama dengan kristal tunggal yang pernah dilaporkan oleh Muzikar, *et. al.* [10] maupun Abduh [7], sedangkan karakterisasi dengan EDAX mengindikasikan bahwa Kristal memiliki kemurnian 94,45%.

DAFTAR PUSTAKA

1. Elliot, S.R., 1998, *The Physics and Chemistry of Solids*, John Willey and Sons Ltd., Chichester, England.
2. Liu Z.dan Stavrinadis A., 2008, *Growth of Bulk Single Crystal and its Application to SiC*, Physics of Advanced Materials Winter School.
3. Vogel, 1979, *Buku Teks Analisis Anorganik Kualitatif Makro dan Semimikro Bagian 1*, penerjemah Pudjaatmaka, edisi kelima, PT. Kalman Media Pustaka, Jakarta, hal.72-91, 300.
4. Khan, A.S., Devore, T.C., dan Reed, W.F.(1976). *Growth of the Transition Metal Oxalates in Gels*, journal of Crystal Growth, Vol. 35, Issue 3, 337 – 339.
5. Henisch, H. K., 1988, *Crystal in Gel and Liesegang Rings*, Cambrige, University Press, Australia.
6. Patel, A. R dan A. V. Rao, 1982, *Crystal Growth in Gel Media*, Bull Mater Sci., India
7. Abduh F, 2005, *Sintesis dan Karakterisasi Kristal Tunggal Emas dalam Gel Metasilikat*, Skripsi, Jurusan Kimia. Fakultas MIPA, Universitas Brawijaya : Malang.
8. Mohammadnejad, S., John, L.P., dan Jannie, S.J., 2013, Reduction of Gold(III) Chloride to Gold (0) on Silicate Surface, *ELSEVIER*.
9. Suib, S. L., 1985, *Crystal Growth in Gel*, J. C. Ed, vol. 62, No.1, pp. 81-82.
10. Muzikar, M., V. Komanicky, dan W.R., Fawcett, 2006, A Detailed Study of Gold Single Crystal Growth in a Silica Gel, *ELSEVIER*.