PENGARUH JENIS BASA PENGENDAP DAN WAKTU PELAPISAN TERHADAP SIFAT HIDROFILIK UBIN KERAMIK ANTIMIKROBA

*The Effect of Alkali Addition and Coating Time on Hydrophilic Properties
of Antimicrobial Ceramic Tiles*

Irna Rosmayanti^{*)}, Rizky Berliana W^{*)} dan Eneng Maryani^{*)}

^{*)}kontributor utama

Balai Besar Keramik
Jl. Jend Ahmad Yani No 392 Bandung 40272

irna.rosmayanti@gmail.com

Naskah masuk: 28 November 2019 , Revisi: 5 Februari 2020, Diterima: 10 Februari 2020

ABSTRAK

Lasir antimikroba digunakan untuk kebutuhan sanitasi dalam lingkungan khusus seperti rumah sakit. Sifat antimikroba terjadi karena adanya aktivitas fotokatalitik material anorganik TiO_2 yang akan menyebabkan suatu permukaan bersifat hidrofilik, yaitu apabila nilai sudut kontak $< 65^\circ$. Pada penelitian ini dilakukan pelapisan ubin poles menggunakan material TiO_2 yang telah dipreparasi melalui proses pelarutan dalam asam sulfat dilanjutkan pembentukan gel dengan penambahan 2 jenis basa yaitu amonia dan amonium bikarbonat. Gel TiO_2 yang terbentuk didispersikan dalam aquades kemudian dilapiskan pada permukaan ubin dengan cara perendaman (*dip coating*) dengan variasi waktu pengendapan 3 jam, 6 jam dan 53 jam. Berdasarkan hasil uji ANOVA, jenis basa dan waktu pelapisan berpengaruh pada sudut kontak yang dihasilkan. Ubin yang dilapisi TiO_2 dari basa ammonium bikarbonat menghasilkan permukaan yang bersifat lebih hidrofilik. Semakin lama waktu pelapisan membuat ubin semakin bersifat hidrofilik.

Kata Kunci : Ubin keramik, TiO_2 , Hidrofilik, Sudut kontak, Basa pengendap, Pelapisan.

ABSTRACT

Antimicrobial glaze is used for sanitation needs in special environments such as hospitals or schools. Antimicrobial properties of TiO_2 involve photocatalytic activity on inorganic material. A hydrophilic surface, with contact angle value $< 65^\circ$, is resulted by those activity. In this study, polished tile coating was done using TiO_2 material which had been prepared through a dissolving process in sulfuric acid followed by gel formation with addition of two types of alkali, ammonia and ammonium bicarbonate. The TiO_2 gel formed was dispersed in aquadest and then coated on the surface of the tile by dip coating with various deposition times (3 hours, 6 hours and 53 hours). ANOVA test results represent that both main effect of alkali type and coating time,

and interaction effect of these variable produce significant effects on contact angles. Addition of ammonium bicarbonate produce better hydrophilic surface on the tile than addition of ammonia. The longer coating time will increase hydrophilic characteristic of the surface.

Keywords: Ceramic tile, TiO_2 , Hydrophilic, Contact angle, Alkali, Coating.

I. PENDAHULUAN

Kemampuan untuk membunuh atau mengontrol mikroorganisme, penting bagi beberapa industri seperti industri makanan dan minuman, farmasi dan kesehatan. Dalam bidang pelayanan kesehatan, khususnya rumah sakit, salah satu persyaratan sanitasi lingkungan dalam Peraturan Menteri Kesehatan Nomor 7 Tahun 2019, yaitu standar baku mutu pada lantai dan dinding setelah proses disinfeksi adalah bebas mikroorganisme dan gas gangren. Penambahan lapisan antimikroba pada produk keramik berglasir, khususnya ubin keramik, baik dinding maupun lantai, merupakan salah satu alternatif untuk mengendalikan pertumbuhan bakteri dan mikroorganisme.

Sifat antimikroba pada oksida berdasar pada kemampuan fotokatalitik suatu bahan. Beberapa penelitian mengenai lapisan antimikroba telah dilakukan dengan menggunakan material seperti partikel nano TiO_2 dan ZnO . Bahan

antimikroba yang banyak digunakan untuk keperluan komersil adalah TiO_2 [1][2]. TiO_2 memiliki sifat fotokatalis yang bisa menghasilkan efek antimikroba. Fotokatalisis merupakan proses mempercepat reaksi redoks karena adanya material khusus berupa semikonduktor yang akan membentuk *Reactive Oxygen Species* (ROS) di bawah paparan sinar UV dan sinar matahari. Pembentukan ROS menyebabkan inaktivasi enzim dan protein sel membran bakteri serta permeabilitas yang tinggi sehingga partikel nano mudah masuk ke dalam sel dan mengganggu keseimbangan transportasi, respirasi energi hingga akhirnya mikroorganisme mati [3].

Di samping itu, proses fotokatalisis akan membentuk radikal $\bullet\text{OH}$ yang akan bereaksi dengan Ti menghasilkan ikatan Ti-OH yang bersifat hidrofilik sehingga membuat tetesan air menyebar rata pada permukaan bahan yang dilapisi TiO_2 [4]. Sifat hidrofilik ini menjadi salah satu indikasi terjadinya proses

fotokatalisis bahan yang dilapisi oleh TiO_2 [5].

Material TiO_2 memiliki tiga fasa kristal yaitu anatase, rutil dan brookit. Di antara ketiga fasa tersebut, anatase merupakan fasa kristal yang stabil dan memiliki energi celah yang paling besar (3,2 eV) serta memiliki gugus -OH yang lebih banyak pada permukaannya sehingga lebih aktif sebagai bahan fotokatalis atau antimikroba [6].

Pada tahun 2006, Hasmaliza telah melakukan penelitian pembuatan glasir ubin keramik dengan penambahan TiO_2 anatase yang memiliki kemampuan antimikroba namun terdapat penurunan performa glasir secara visual [7]. Dalam penelitian ini, bahan antimikroba diaplikasikan pada ubin keramik yang sudah diglasir atau dipoles untuk mempertahankan kualitas visual ubin keramik.

Pada penelitian ini dilakukan pembuatan serbuk nano TiO_2 anatase dengan metode sol gel [8][9] untuk kemudian dilapiskan pada ubin poles. Morfologi dan sifat-sifat TiO_2 yang

dihasilkan dipengaruhi oleh jenis prekursor, metode sintesis, temperatur, waktu sintesis, dan jenis basa [10].

Pengaruh jenis basa pengendap dan waktu pelapisan terhadap sudut kontak akan dianalisa secara statistik dengan menggunakan ANOVA (*analysis of variance*).

II. METODOLOGI PENELITIAN

2.1. Penyiapan Gel TiO_2 sebagai Bahan Antimikroba

Serbuk TiO_2 ditimbang sebanyak 2 gram, kemudian dilarutkan dalam 500 mL larutan H_2SO_4 5%, diaduk dengan *magnetic stirrer* sambil dipanaskan pada suhu sekitar 100°C selama (4-4,5) jam sampai semua serbuk TiO_2 larut. Setelah larutan dingin, gel TiO_2 dibentuk dengan penambahan larutan basa pengendap berupa NH_3 1:1 (kode TN) atau larutan NH_4HCO_3 25% (kode TC) sampai terjadi endapan putih (pH sekitar 8-9). Endapan dipisahkan dengan filtrat dengan cara dekantasi lalu dicuci (3-5) kali hingga filtrat menjadi pH 7 dan bersih dari asam sulfat.

Gambar 1. Diagram alir prosedur pembuatan lapisan antimikroba pada ubin

2.2. Pelapisan Material Antimikroba pada Ubin Keramik

Potongan ubin poles berukuran (5 x 5) cm dibersihkan dan direndam dalam etanol dan disonikasi pada alat sonikator selama 1 jam. Setelah itu, potongan ubin tersebut dilapis material antimikroba dengan cara *dip coating* yaitu direndam ke dalam bahan antimikroba berupa suspensi dari gel TiO₂ yang telah disiapkan sesuai prosedur dalam butir a. Perendaman tersebut dilakukan dengan variasi waktu (6, 12 dan 53) jam dalam suspensi yang terus diaduk agar homogen. Kemudian ubin diangkat dan dikeringkan di udara terbuka dilanjutkan dalam oven pada suhu 100°C. Ubin yang telah kering dibakar pada suhu 500°C dengan trayek pembakaran (25-100)°C (15 menit); 100°C (4 jam); (100-500)°C (3,5 jam); 500°C (1 jam); dilanjutkan dengan penurunan suhu hingga 40°C dalam waktu 30 menit. Prosedur pembuatan

material antimikroba pada ubin keramik dapat dilihat pada Gambar 1.

2.3. Pengujian Sampel

Pengujian sudut kontak dilakukan dengan jumlah variasi sebanyak enam variasi dan pengukuran berulang sebanyak lima kali sehingga jumlah sampel penelitian adalah sebanyak 30 sampel. Pengujian XRD dilakukan untuk mengetahui kandungan mineral dalam TiO₂.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Mekanisme antimikroba dari material anorganik seperti TiO₂ terjadi melalui proses fotokatalisis melalui reaksi sebagai berikut [11] :

Adanya poton yang terserap pada lapisan TiO₂ yang menyebabkan

elektron pada pita valensi (e_{vb}^-) berpindah ke pita konduksi (e_{cb}^-) akan meninggalkan lubang positif pada pita valensi (h_{vb}^+) (persamaan reaksi 1). Proses redoks kemudian terjadi jika ada senyawa yang teradsorpsi pada permukaan semikonduktor menghasilkan *reactive oxygen species* (ROS) berupa O_2^- (reaksi 2) dan $\bullet OH$ (reaksi 3). Ketika permukaan terkena air atau polutan organik yang mengandung air, maka akan terjadi reaksi (4), (5) dan (6) menghasilkan gugus -OH yang bersifat hidrofilik.

Proses fotokatalisis dari TiO_2 menyebabkan permukaannya bersifat hidrofilik. Makin bersifat hidrofilik suatu permukaan atau mendekati sifat superhidrofilik ditandai dengan semakin kecilnya nilai sudut kontak. Semakin baik aktivitas fotokatalitik yang terjadi semakin hidrofilik suatu permukaan. Untuk mengetahui karakteristik kebasahan (*wettability*) dari suatu permukaan dapat dilakukan melalui pengukuran sudut kontak. Permukaan yang bersifat hidrofilik ditandai dengan sudut kontak yang berkisar $0-65^\circ$.

Variabel dalam percobaan ini berupa jenis basa pengendap dan waktu pelapisan pada ubin dengan respon percobaan yang diamati adalah sudut kontak. Jenis basa

pengendap yang tepat akan menghasilkan gel TiO_2 yang memberikan efek fotokatalisis yang baik. Waktu pelapisan berpengaruh terhadap tebal lapisan dan jumlah bahan antimikroba TiO_2 yang menempel pada ubin keramik. Akan tetapi, untuk mempertahankan kualitas visualnya, waktu pelapisan perlu dibatasi karena semakin lama waktu pelapisan akan meningkatkan keburaman bahan yang dilapisi, sehingga waktu pelapisan dibatasi sampai 53 jam. Pada pengujian sampel ubin yang sudah dilapisi TiO_2 didapatkan hasil pengujian *brightness* ubin mulai mengalami peningkatan pada ubin yang telah melalui proses pelapisan selama 53 jam.

Hasil pengujian sudut kontak tercantum dalam Tabel 1. Ubin keramik yang digunakan sebagai sampel ubin yang akan dilapisi antimikroba adalah ubin poles yang berasal dari salah satu industri ubin keramik (PT X). Hasil pengukuran sudut kontak pada ubin awal dari PT X yang belum dilapisi TiO_2 adalah sebesar $49,9^\circ$. Gambar 2 menunjukkan bahwa lapisan air menyebar rata pada permukaan ubin yang sudah dilapisi bahan antimikroba TiO_2 dengan nilai sudut kontak lebih

rendah dibandingkan sudut kontak ubin keramik awal, yaitu antara 20 – 36,6° (Tabel 1).

Sebelum dilapisi dengan TiO_2 permukaan ubin sudah bersifat hidrofilik (sudut kontak 49,9°). Setelah dilakukan pelapisan, sifat hidrofilik pada permukaan semakin baik yang ditunjukkan dengan berkurangnya nilai sudut kontak dari ubin.

Pengaruh jenis basa pengendap dan waktu pelapisan dianalisis menggunakan metode ANOVA. Pengujian hasil ANOVA menunjukkan bahwa sudut kontak dipengaruhi signifikan oleh variabel jenis basa dan

waktu. Efek interaksi dari kedua variabel (basa*waktu) menunjukkan pengaruh yang signifikan. Hal ini dilihat dari hasil *p-value* yang lebih kecil dari α (0,05). Nilai signifikansi 0,05 digunakan pada penelitian eksakta. Pada bidang sosial digunakan nilai 0,1 serta nilai 0,01 pada bidang kesehatan.

Gambar 2. Pengukuran sudut kontak ubin keramik (a) ubin keramik awal; (b) ubin keramik yang sudah dilapisi bahan antimikroba

Tabel 1. Hasil pengukuran sudut kontak ubin keramik

No	Jenis basa pengendap	Waktu (jam)	Sudut kontak (°)
1	NH_4HCO_3	3	33.3
2	NH_4HCO_3	3	35.9
3	NH_4HCO_3	3	34.6
4	NH_4HCO_3	3	32.6
5	NH_4HCO_3	3	31.6
6	NH_4HCO_3	6	21.5
7	NH_4HCO_3	6	23.5
8	NH_4HCO_3	6	20.4
9	NH_4HCO_3	6	16.6
10	NH_4HCO_3	6	26.6
11	NH_4HCO_3	53	28.1
12	NH_4HCO_3	53	20
13	NH_4HCO_3	53	11.4
14	NH_4HCO_3	53	21.7
15	NH_4HCO_3	53	21.8

No	Jenis basa pengendap	Waktu (jam)	Sudut kontak (°)
16	Ammonia	3	26.4
17	Ammonia	3	27.7
18	Ammonia	3	28.7
19	Ammonia	3	30.4
20	Ammonia	3	25.6
21	Ammonia	6	35.1
22	Ammonia	6	36.6
23	Ammonia	6	33.2
24	Ammonia	6	33.1
25	Ammonia	6	32.7
31	Ammonia	53	28
32	Ammonia	53	26.5
33	Ammonia	53	25.6
34	Ammonia	53	24.6
35	Ammonia	53	25

Tabel 2. Hasil uji ANOVA basa*waktu

Analysis of Variance					
Source	DF	Adj SS	Adj MS	F-Value	p-Value
Basa	1	118,4	118,41	11,69	0,002
Waktu	2	280,6	140,31	13,86	0,000
Basa*Waktu	2	423,8	211,89	20,93	0,000
Error	24	243,0	10,13		
Total	29	1065,8			
Coefficients					
Term	DF	Adj SS	Adj MS	F-Value	p-Value
Constant	25,80	3,98	6,48	0,000	
Basa	2,74	2,52	1,09	0,286	1,81
Waktu	-0,216	0,129	-1,67	0,106	10,00
Basa*Waktu	0,0596	0,0816	0,73	0,472	10,81
Model Summary					
S	R-sq	R-sq(adj)	R-sq(pred)		
3,18201	77,20%	72,45%	64,38%		

Nilai *R square* didapat sebesar 72.45%. Nilai ini menunjukkan besarnya hubungan antara faktor jenis basa dan waktu pelapisan memiliki tingkat korelasi 72.45%. Untuk mengetahui hubungan antara variable dan respon dilakukan analisis regresi. Koefisien untuk variabel basa bernilai positif yang berarti penggunaan basa ammonia akan meningkatkan sudut kontak daripada basa ammonia bikarbonat. Koefisien waktu bernilai negatif berarti semakin lama waktu pelapisan menghasilkan sudut kontak yang lebih kecil. Pengecekan model regresi yang dihasilkan dilakukan dengan membuat grafik *normality*, grafik residu vs *fitted value* serta grafik residual vs order. Nilai residual

mendekati normal plot. Grafik residual vs *fitted value* serta grafik residual vs order tidak menunjukkan pola tertentu sehingga dapat disimpulkan bahwa model hasil ANOVA dinyatakan valid.

Gambar 2. Grafik *normality*

Gambar 3. Grafik *residu versus fits* Gambar 4. Grafik *residu versus order* Gambar 5. Difraktogram TiO_2 dengan basa pengendap Ammonia dan Ammonium Bikarbonat

Dari grafik hasil XRD pada gambar 5 berikut ini terlihat bahwa pada TiO_2 yang dihasilkan dari basa ammonia tidak hanya terdiri dari fase anatase tetapi juga rutil. Anatase menghasilkan aktivitas fotokatalis yang lebih tinggi

dibanding rutil karena energi celahnya yang lebih tinggi sehingga kemampuan untuk bereaksi menghasilkan radikal lebih tinggi dibanding rutil (anatase 3,2 eV rutil 3,0 eV). Adanya aktivitas fotokatalis

menyebabkan permukaan benda menjadi bersifat hidrofilik. Semakin lama waktu pelapisan menyebabkan makin banyak TiO_2 yang menempel pada ubin sehingga semakin besar aktivitas fotokatalitik yang dihasilkan dan semakin menurunnya sudut kontak.

IV. KESIMPULAN

Berdasarkan pengujian data menggunakan metode ANOVA, sudut kontak dipengaruhi secara signifikan oleh efek utama jenis basa dan waktu pelapisan serta interaksi dari jenis basa dan waktu pelapisan. Koefisien untuk variabel basa bernilai positif yang berarti penggunaan basa amonia akan meningkatkan sudut kontak daripada basa amonium bikarbonat sehingga penggunaan basa pengendap amonium karbonat memberikan efek hidrofilik yang lebih baik dibandingkan amonia. Koefisien waktu bernilai negatif, berarti semakin lama waktu pelapisan menghasilkan sudut kontak yang lebih kecil, sehingga dalam penelitian ini kondisi optimum pelapisan dicapai pada waktu pelapisan 53 jam. Hasil uji kecukupan model ANOVA dengan analisis residu menunjukkan bahwa model hasil ANOVA dapat dinyatakan valid

dengan tingkat korelasi sebesar 72.45%.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] K. Hashimoto, H. Irie, and A. Fujishima, "TiO₂ Photocatalysis: A Historical Overview and Future Prospects," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 12, pp. 8269–8285, 2006.
- [2] T. Verdier, M. Coutand, A. Bertron, and C. Roques, "Antibacterial Activity of TiO₂ Photocatalyst Alone or in Coatings on E. coli: The Influence of Methodological Aspects," *J. Coating, Multidiscip. Digit. Publ. Inst.*, pp. 670–686, 2014.
- [3] C. Regmi, B. Joshi, S. K. Ray, and G. Gyawali, "Understanding Mechanism of Photocatalytic Microbial Decontamination of Environmental Wastewater," *Front. Chem.*, vol. 6, no. February, pp. 1–6, 2018.
- [4] X. Liu, Y. Tong, and J. Chen, "Surface Curing and Properties of Titanium Dioxide Self - Cleaning Ceramics," *EnPress Publ.*, pp. 1–6, 2018.
- [5] K. Guan, "Relationship Between Photocatalytic Activity, Hydrophilicity and Self-

- Relationship between photocatalytic activity, hydrophilicity and self-cleaning effect of TiO₂ / SiO₂ films,” *Surf. Coat. Technol.*, vol. 191, no. February 2005, pp. 155–160, 2017.
- [6] R. Asahi, “Visible-Light Photocatalysis in Nitrogen-Doped Titanium Oxides,” *Sci. Journal, Am. Assoc. Adv. Sci.*, vol. 293, no. 2001, 2012.
- [7] M. Hasmaliza, H. S. Foo, and K. Mohd, “Anatase as Antibacterial Material in Ceramic Tiles,” *Procedia Chem.*, vol. 19, pp. 828–834, 2016.
- [8] W. Mekprasart and W. Pecharapa, “Synthesis and characterization of nitrogen-doped TiO₂ and its photocatalytic activity enhancement under visible light,” *Energy Procedia*, vol. 9, pp. 509–514, 2011.
- [9] V. Caratto, L. Setti, S. Campodonico, and M. M. Carnasciali, “Synthesis and characterization of nitrogen-doped TiO₂ nanoparticles prepared by sol – gel method Synthesis and characterization of nitrogen-doped TiO₂ nanoparticles prepared by sol – gel method,” *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, no. July, 2012.
- [10] F. M. K. Tehrani, M. Rashidzadeh, A. Nemati, and A. Irandoukht, “FACTORS INFLUENCING THE PREPARATION OF TiO₂ NANOPOWDERS FROM TITANIA SOL,” *J. Ceram. – Silikáty*, vol. 55, pp. 31–35, 2011.
- [11] P. Magalh, L. Andrade, O. C. Nunes, and A. Mendes, “TITANIUM DIOXIDE PHOTOCATALYSIS : FUNDAMENTALS AND APPLICATION ON PHOTOINACTIVATION,” *Rev. Adv. Mater. Sci.*, vol. 51, pp. 91–129, 2017.