

Penyediaan Aerogel Terubah Suai Polivinil Alkohol/Selulosa Mikrohablur Sebagai Pemisah Minyak/Air

(Preparation of Modified Polyvinyl Alcohol/Microcrystalline Cellulose Aerogel as Oil/Water Separator)

MUHAMMAD FARIS SAIFUL HISHAH, HASAN SAFAR & ISHAK AHMAD*

*Jabatan Sains Kimia, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia,
43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

Diserahkan: 30 April 2024/Diterima: 1 Julai 2024

ABSTRAK

Insiden tumpahan minyak memberi kesan yang buruk terhadap alam sekitar, terutamanya kepada ekosistem hidupan akuatik yang seterusnya akan menjejaskan kesihatan manusia. Aerogel yang telah diubah suai mempunyai potensi untuk dijadikan sebagai bahan pemisah minyak dan air. Pengubahsuaian terhadap permukaan aerogel menjadikan sifatnya berubah kepada oleofilik dan hidrofobik yang amat membantu dalam proses resapan minyak sekali gus menghalang kemasukan air ke dalamnya. Penyelidikan ini dijalankan untuk menghasilkan aerogel PVA/MCC serta mengkaji potensinya sebagai pemisah air/minyak. Selain itu, kajian ini turut dilakukan untuk meneliti kesan kandungan MCC terhadap sifat hidrofobik dan mekanikal aerogel PVA/MCC. Aerogel dihasilkan dengan menggunakan kaedah pengeringan sejuk beku, kemudian, permukaannya telah dirawat dengan silana melalui kaedah pemendapan wap kimia (CVD) untuk memberikannya sifat hidrofobik dan oleofilik. Berdasarkan analisis FTIR, kumpulan berfungsi silanol (Si-OH) yang memberikan sifat hidrofobik kepada aerogel telah dikesan. Berdasarkan pemerhatian mikroskopi imbasan elektron (SEM), peningkatan kandungan MCC kepada komposit aerogel PVA dapat meningkatkan keporosan aerogel dan membuatkan permukaannya semakin kasar. Kemudian, melalui analisis sudut sentuh dan ujian mampatan pula, aerogel yang mengandungi 8%MCC mempunyai sudut sentuh tertinggi iaitu 143.13° dan kekakuan yang tinggi. Akan tetapi, melalui keputusan analisis jerapan fizikal, aerogel yang ditambah dengan 4%MCC mempunyai luas permukaan dan jumlah isi padu liang tertinggi iaitu $2.1302 \text{ m}^2/\text{g}$ dan $0.002277 \text{ cm}^3/\text{g}$. Malah, ia juga mempunyai kapasiti penyerapan minyak yang tertinggi, iaitu 0.55 g/g . Berdasarkan keputusan yang diperolehi, penambahan MCC telah meningkatkan potensi komposit aerogel sebagai pemisah minyak dan air.

Kata kunci: Aerogel; MCC; penyerap minyak; PVA; sudut sentuh

ABSTRACT

Oil spillage get tremendously effect on environment especially aquatic life that has consequences for human life. Modified aerogel has arisen potentially for separating oil-water due to changes on surfaces to hydrophobic properties which is very helpful in the process of oil diffusion as well as preventing the entry of water into it. This study was conducted to produce PVA/MCC aerogel and to study its potential as a oil/water separator. Aerogel is produced using a freeze-drying method, then, the surface has been treated with silane through a chemical vapor deposition method (CVD) to give it hydrophobic and oleophilic properties. Based on FTIR analysis, silanol functional groups (Si-OH) which provide hydrophobic properties to the aerogel were detected. In addition, observation under scanning electron microscopy (SEM) shows increasing the MCC content can increase the porosity of the aerogel and make the surface rougher. The water contact angle show PVA/8%w/v MCC has the highest degree at 143.13° and high tensile strength. Otherwise, PVA/4%w/v MCC aerogel has the highest surface area and total pore volume at $2.1302 \text{ m}^2/\text{g}$ and $0.002277 \text{ cm}^3/\text{g}$. The oil absorption test show PVA/4%w/v MCC aerogel has the highest absorption with 0.55 g/g . From these results, the addition of MCC has increased the potential of airgel composites as oil and water separators.

Keywords: Aerogel; contact angle; MCC; oil absorption; PVA

PENDAHULUAN

Insiden pencemaran minyak atau pelarut organik yang berlaku telah mencetuskan masalah alam sekitar kerana mengganggu kelangsungan hidup manusia dan persekitaran ekologi akan terancam (Viswanathan et al. 2024). Terdapat tiga kategori kaedah penyerapan yang telah digunakan bagi

menyelesaikan masalah kemalangan tumpahan minyak iaitu: kaedah kimia, biologi dan fizikal. Selain itu, bagi kaedah biologi, keberkesanan mikroorganisma yang digunakan untuk mendegradasi molekul hidrokarbon yang terdapat dalam minyak agak terbatas kerana dipengaruhi oleh faktor luar seperti pH, suhu dan kandungan oksigen

(Rafieian et al. 2018). Kaedah rawatan secara konvensional seperti rawatan biologi, pengklorinan, pemendapan, penapisan dan penggumpalan telah dijalankan bersekali dengan rawatan yang lebih terkehadapan seperti penapisan melalui membran, kemajuan pengoksidaan dan pertukaran ion adalah merupakan langkah yang dilaksanakan bagi menjimatkan kos dan lebih berkesan (Kathi & Mahmud 2024).

Sinar gamma telah mendapat tempat sebagai bahan yang digunakan dalam kajian walaupun mempunyai kesan terhadap kesihatan manusia kerana tenaga dan frekuensi yang tinggi daripada gelombang elektromagnetiknya (Chang et al. 2023). Sinar gamma telah digunakan dalam pengkajian bagi bahan nano, polimer nano-komposit dan logam nano-kluster, pemangkin foto dan sensor (Zikalala et al. 2024). Pemendapan wap kimia menggunakan silana telah digunakan bagi mengubah sifat hidrofilik bahan atau permukaan merupakan teknik yang lebih terkehadapan berbanding kaedah tradisi iaitu pemendapan fasa cecair. Pemendapan wap kimia boleh dijalankan setelah mengenal pasti bahan yang akan diwapkan seperti takat didih dan dilakukan menggunakan peralatan tertentu (Atia et al. 2023). Pelbagai jenis dan peralatan boleh digunakan apabila menggunakan kaedah pemendapan wap kimia termasuk menggunakan kaedah haba (Yoshimura et al. 2023) kerana ia merupakan kaedah salutan daripada laluan kering (Aslam et al. 2023).

Dalam kajian ini, polivinil alkohol (PVA) digunakan sebagai matriks bagi menghasilkan aerogel. PVA mempunyai keterlarutan yang tinggi dalam air dan mesra alam kerana merupakan bahan yang boleh didegradasi (Rong et al. 2021). Namun, aerogel PVA mempunyai beberapa kelemahan iaitu mempunyai sifat mekanikal yang lemah dan sifat hidrofilik yang tidak sesuai bagi tujuan penyerapan minyak dalam air (Zhang & Zhang 2020). Sifat mekanik PVA dapat ditingkatkan dengan menggunakan pengisi. Selulosa mikrohablur (MCC) merupakan bahan yang sesuai bagi mengukuhkannya kerana mempunyai ketumpatan yang rendah, kehabluran dan kekuatan yang tinggi, kos rendah dan bersifat biodegradasi. Malah, penggunaan MCC sebagai pengisi telah dibuktikan dapat meningkatkan sifat mekanikal aerogel (Ozen et al. 2021). Sinar gamma telah digunakan sebagai taut silang bagi polimer matriks ini.

Bagi meningkatkan sifat hidrofobik aerogel PVA/MCC, permukaannya telah dirawat dengan menggunakan silana. Pengubahsuaian aerogel dengan menggunakan kaedah pemendapan wap kimia dengan silana mampu meningkatkan sifat penyerapan minyak, sekali gus, memberikan sifat hidrofobik kepada aerogel (Rong et al. 2021). Tujuan kajian ini dijalankan adalah untuk menghasilkan aerogel PVA/MCC sebagai pemisah air/minyak. Selain itu, untuk mengkaji kesan kandungan MCC yang berbeza terhadap sifat hidrofobik aerogel PVA/MCC dan untuk mengkaji kesan kandungan MCC yang berbeza terhadap sifat mekanikal aerogel PVA/MCC.

UJI KAJI

BAHAN

PVA (keterlarutan penuh, ~30,000 mw, Sigma-Aldrich, Ontario, Canada) dan klorotrimetilsilana (GC, ketulenan 99%, Aldrich) dan selulosa mikrohablur telah diperolehi daripada Merck (Germany).

SINTESIS AEROGEL PVA/MCC

Aerogel PVA/MCC telah disintesis seperti yang dilaporkan oleh Tai et al. (2022) dengan melakukan sedikit pengubahsuaian. Dengan menggunakan plat pemanas, sebanyak 100 mL air suling telah dipanaskan sehingga mencecah suhu 90 °C. Kemudian, 10 g PVA telah dimasukkan dan dikacau sehingga PVA larut sepenuhnya. Selepas itu, 2 g MCC dicampurkan ke dalam campuran tersebut dan dikacau sehingga sebati. Seterusnya, campuran tersebut dituang ke dalam acuan silinder 20 mL dan dikenakan sinaran dengan 10 kGy sinar gamma di Bangunan Sains Nuklear UKM. Kemudian, ia disejukkan di dalam peti sejuk bagi membentuk gel akues dan selepas itu dimasukkan ke dalam pengering sejuk beku pada suhu -40 hingga -48 °C dalam keadaan vakum selama 24 jam. Proses ini telah diulang dengan menggunakan kuantiti MCC yang berbeza iaitu, 0%w/v, 2%w/v, 4%w/v dan 8%w/v dengan label sebagai A, B, C dan D.

PENGUBAHSUAIAN PERMUKAAN AEROGEL PVA/MCC

Pengubahsuaian permukaan aerogel PVA/MCC telah diolah dari kaedah yang dilakukan oleh Gong et al. (2019). Sebuah botol kecil yang mengandungi 2.0 mL klorotrimetilsilana (TMCS) telah diletakkan di dalam bekas kaca bertutup dan dibiarkan selama 10 minit supaya wap memenuhi ruang berlaku kemudian sampel aerogel dimasukkan ke dalamnya. Bekas ditutup rapat dan dibiarkan selama 24 jam pada suhu 38 °C. Selanjutnya, aerogel tersebut dikeluarkan dan dipanaskan di dalam ketuhar pada suhu 50 °C selama 24 jam untuk menyingkirkan lebih TMCS.

PENCIRIAN AEROGEL PVA/MCC

Bagi mengesahkan kehadiran kumpulan berfungsi hidrofobik pada aerogel, sampel telah dianalisis menggunakan spektroskopi inframerah transformasi Fourier (FTIR), model Cary 630 daripada Agilent Technologies. Kumpulan berfungsi yang terdapat pada kedua-dua jenis aerogel telah dianalisis dalam mod ATR-FTIR dan direkodkan dalam julat 4000-700 cm⁻¹. Morfologi permukaan dan struktur dalaman setiap aerogel telah dikaji dengan menggunakan analisis pencirian mikroskopi imbasan elektron (SEM) pada pembesaran 100x dan 500x. Imej yang terhasil daripada SEM

menunjukkan struktur dan sifat permukaan aerogel dan susunan, saiz dan struktur liang pada bahagian dalam aerogel. Kemudian, perbandingan telah dibuat berdasarkan imej yang diperoleh dan telah dibincangkan. Sifat keporosan aerogel telah ditentukan melalui penganalisis jerapan fizikal model Cary 630, daripada Agilent Technologies. Ukuran luas permukaan dan jumlah isi padu liang telah ditentukan melalui penjerapan molekul gas nitrogen, N₂ pada permukaan sampel aerogel. Setiap sampel telah dinyahgas pada suhu 70 °C selama semalaman dan kemudian, dinyahgas pada 115 °C selama 4 jam, diikuti dengan analisis BET pada -196 °C (Rafeian et al. 2018).

Goniometer sudut sentuh, HO-IAD-CAM-01A, berjenama Holmarc telah digunakan bagi menentukan sifat hidrofobik aerogel melalui analisis sudut sentuh. Setitis air berisi padu 3 µL telah dititiskan ke atas permukaan sampel aerogel pada kadar aliran 10 µL/min. Sifat hidrofobik aerogel ditentukan melalui nilai sudut sentuh yang terhasil. Analisis kekuatan mekanik aerogel telah dijalankan dengan menggunakan mesin ujian universal Instron. Sampel aerogel yang berbentuk silinder dengan ketinggian 18 mm dan diameter 25 mm telah disediakan bagi menjalani ujian mampatan. Ujian dijalankan dengan kadar pemuatan mesin ditetapkan pada 5 mm·min.

PENENTUAN SIFAT HIDROFOBİK AEROGEL PVA/MCC

Aerogel yang tidak mempunyai nilai sudut sentuh melebihi 90° telah menjalani ujian ini bagi menentukan sifat hidrofobiknya. Aerogel ditimbang kosong dahulu dan direndam di dalam sebuah bikar kecil yang mengandungi air selama 10 min. Seterusnya, aerogel yang basah dikeluarkan dan digantung sehingga tiada air yang menitis. Selepas itu, aerogel ditimbang dan berat direkodkan. Setiap ujian dilakukan sebanyak 3 kitaran dengan menggunakan replikasi sampel aerogel yang sama dan nilai purata direkodkan. Sifat hidrofobik aerogel ditentukan melalui kapasiti penyerapan air aerogel tersebut dengan menggunakan formula berikut:

$$Q \text{ (g/g)} = \frac{(W - W_0)}{W_0} \quad (1)$$

dengan W adalah berat aerogel selepas penyerapan; dan W₀ adalah berat aerogel sebelum penyerapan.

PENENTUAN KAPASITI PENYERAPAN MINYAK AEROGEL PVA/MCC

Aerogel kering dipilih dan ditimbang beratnya. 20 mL minyak masak berjenama Saji telah diletakkan ke dalam bikar kecil. Seterusnya, aerogel kering akan direndam ke dalam bikar berisi minyak selama 10 minit. Kemudian, sampel dikeluarkan dan digantung sehingga tiada

minyak masak yang menitis. Berat direkodkan dan diulang sebanyak 3 kitaran dengan menggunakan replikasi sampel aerogel yang sama. Kapasiti penyerapan minyak ditentukan dengan menggunakan formula berikut:

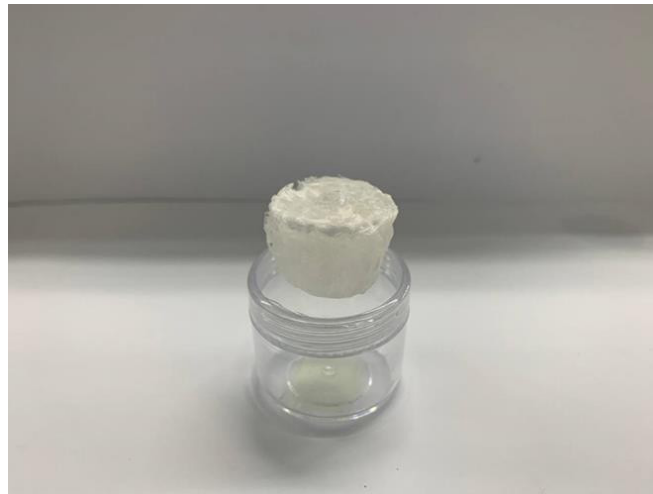
$$Q \text{ (G/G)} = \frac{(W - W_0)}{W_0} \quad (2)$$

dengan W adalah berat aerogel selepas penyerapan; dan W₀ adalah berat aerogel sebelum penyerapan.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

SINTESIS DAN PENGUBAHSUAIAN AEROGEL PVA/MCC

Larutan PVA adalah sebatian rantaian pempolimeran secara ikatan hidrogen. Penambahan MCC ke dalam matriks PVA bertindak sebagai pengisi. Larutan matriks tersebut telah ditaut silang dengan sinaran gamma membentuk komposit polimer PVA-MCC. Aerogel PVA yang telah mengalami pertautan silang oleh sinar gamma mempunyai struktur berliang dengan dinding yang kuat dan padat, manakala MCC yang ditambah pula dapat membantu untuk mengembalikan aerogel kepada bentuk asalnya setelah daya dikenakan kepadanya. Rajah 1(a) adalah sampel aerogel sebelum silanisasi dan 1(b) menunjukkan aerogel setelah silanisasi. Perubahan warna berlaku kerana salutan silana terhadap permukaan aerogel PVA-MCC yang menyebabkan perubahan dari warna jernih putih ke warna perang gelap. Di samping itu, Rajah 2(a) dan 2(b) pula menunjukkan spektrum FTIR perbandingan sampel aerogel yang tanpa dan mempunyai salutan silana. Terdapat beberapa puncak yang mempunyai nilai yang berada dalam julat kumpulan berfungsi yang sama. Puncak lebar pada 3258 cm⁻¹ berada dalam julat yang sama bagi ikatan hidrogen kumpulan hidroksil (-OH), justeru, telah menandakan kehadiran MCC dalam komposisi aerogel tersebut. Selain itu, puncak pada 2939 cm⁻¹ dan 2914 cm⁻¹ pula berada dalam julat yang sama bagi kumpulan alkil (-CH). Seterusnya, puncak 1084 cm⁻¹ pula berada dalam julat yang sama bagi ikatan ganda satu karbon (C-C) (Seera, Kundu & Banerjee 2020). Akan tetapi berdasarkan Rajah 2(b), spektrum aerogel yang diselaputi silana mempunyai satu puncak yang baharu pada 824 cm⁻¹. Puncak tersebut adalah sepadan dengan frekuensi getaran kumpulan berfungsi silanol (Si-OH) (Launer 2013). Justeru, ini menandakan bahawa terdapat pembentukan ikatan antara molekul hidroksil (OH) daripada PVA/MCC dan silikon daripada TMCS. Tambahan pula, ia dapat mengesahkan proses pempadapan wap kimia telah berlaku dengan sempurna. Kehadiran lapisan silana pada luaran sampel aerogel telah dibuktikan menukar sifat hidrofilik menjadi hidrofobik.



RAJAH 1(a). Aerogel PVA/4%MCC sebelum proses silanisasi



RAJAH 1(b). Aerogel PVA/2%MCC selepas proses silanisasi

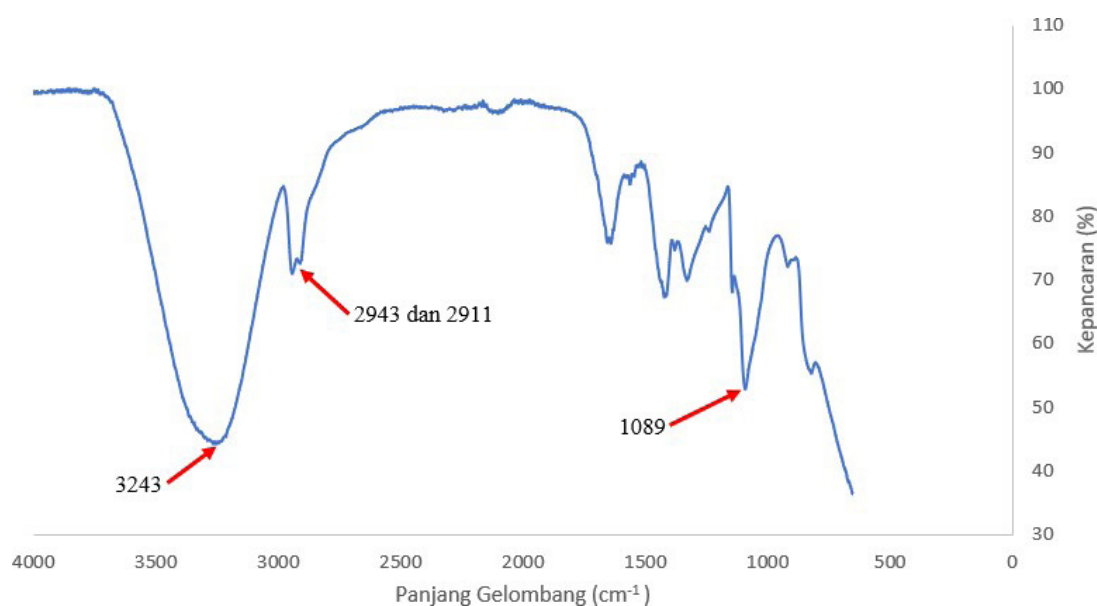
MIKROSKOPI IMBASAN ELEKTRON

Seperti yang dapat dilihat pada Rajah 3, terdapat perbezaan yang ketara antara struktur dalaman aerogel apabila kandungan MCC ditingkatkan. Rajah 3(a) menunjukkan struktur dalaman aerogel yang berongga dan mempunyai liang yang sedikit apabila tiada MCC ditambah kepada matriks PVA. Namun, apabila MCC telah ditambah, keliangan aerogel meningkat kerana pembentukan liang berlaku. Peningkatan kandungan MCC dalam komposit aerogel telah mempengaruhi kepadatan aerogel. Semakin meningkat kandungan MCC, semakin meningkat kepadatan aerogel kerana bilangan liang yang terbentuk bertambah. Tambahan pula, imej yang sama dapat diperhatikan dalam kajian yang dilakukan oleh Zheng et al. (2014).

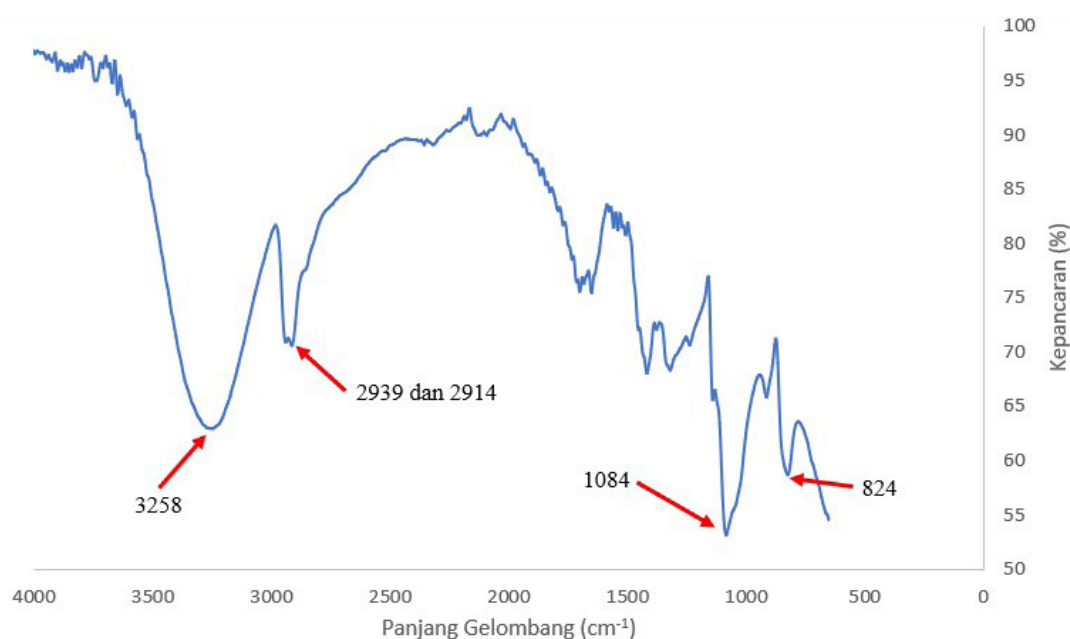
Selain itu, berdasarkan Rajah 3 juga, dapat dilihat bahawa setiap sampel mempunyai struktur mikro yang berliang dengan saiz liang yang berbeza dan tidak sekata. Setiap aerogel mempunyai struktur rangkaian 3D yang membentuk liang tersebut dan perubahan saiznya dapat dilihat apabila kandungan MCC dalam komposit aerogel ditingkatkan. Apabila MCC ditambah sebanyak 2 %w/v, ukuran saiz liang aerogel mengalami penurunan. Kemudian, apabila ia ditingkatkan kepada 4 %w/v, saiz liang menjadi semakin besar. Seperti yang dapat dilihat pada Rajah 3(c), penyebaran liang dalam sampel C adalah sekata. Oleh itu, liang yang terhasil tidak mengalami keruntuhan. Akhir sekali, ukuran saiz liang mengalami penurunan sekali lagi apabila 8%MCC ditambah kepada komposit aerogel. Seperti yang dapat dilihat pada Rajah

3(d), struktur dalam sampel D terlalu padat kerana penyebaran liang tidak sekata. Oleh itu, berlaku keruntuhan pada liang yang terbentuk. Sementara itu, Rajah 4 pula menunjukkan morfologi permukaan aerogel. Berdasarkan Rajah 4(a), dapat dilihat bahawa sampel aerogel yang tidak ditambah dengan MCC mempunyai permukaan yang agak licin, tidak mempunyai liang dan dipenuhi dengan garisan halus. Namun, perubahan yang ketara dapat dilihat apabila MCC ditambah. Berdasarkan Rajah 4(b), apabila MCC ditambah sebanyak 2 %w/v, permukaan aerogel mula mempunyai liang dan menjadi lebih kasar kerana terdapat

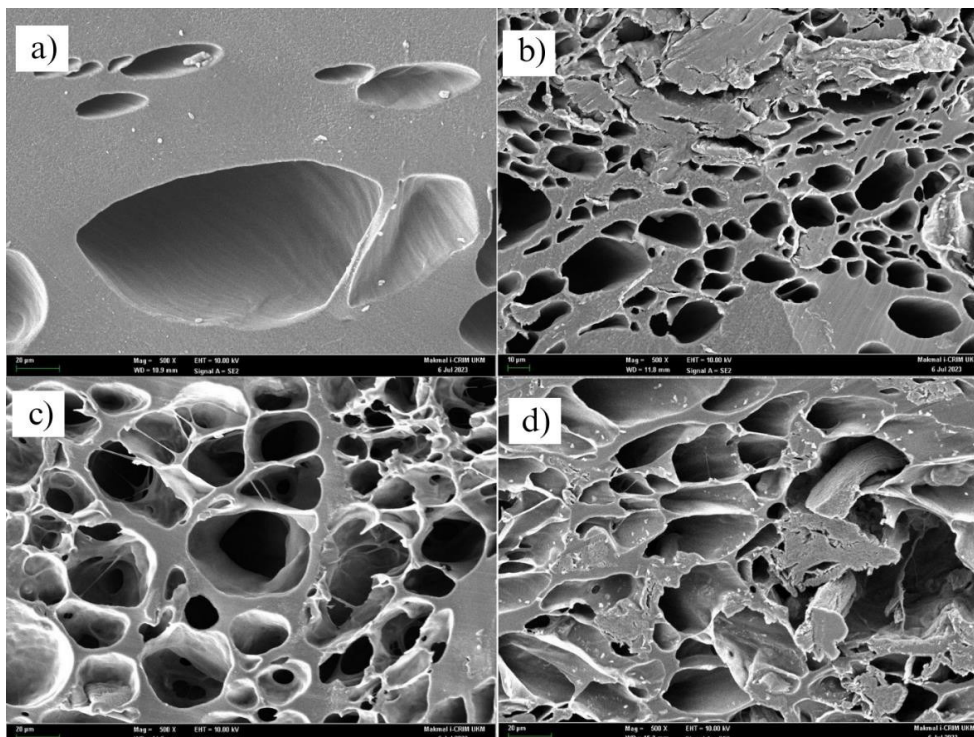
kehadiran komponen yang bergumpal. Setelah dibandingkan dengan imej SEM yang diperolehi daripada kajian El-Sakhawy dan Hassan (2007), komponen ini telah dikenal pasti sebagai MCC, justeru, telah membuktikan kehadiran MCC pada permukaan aerogel. Penambahan MCC pada komposit aerogel telah mempengaruhi sifat permukaan aerogel. Berdasarkan Rajah 4(b), 4(c) dan 4(d), semakin tinggi kandungan MCC dalam komposit aerogel, permukaan aerogel akan menjadi lebih kasar kerana kepadatan MCC pada permukaan akan bertambah.



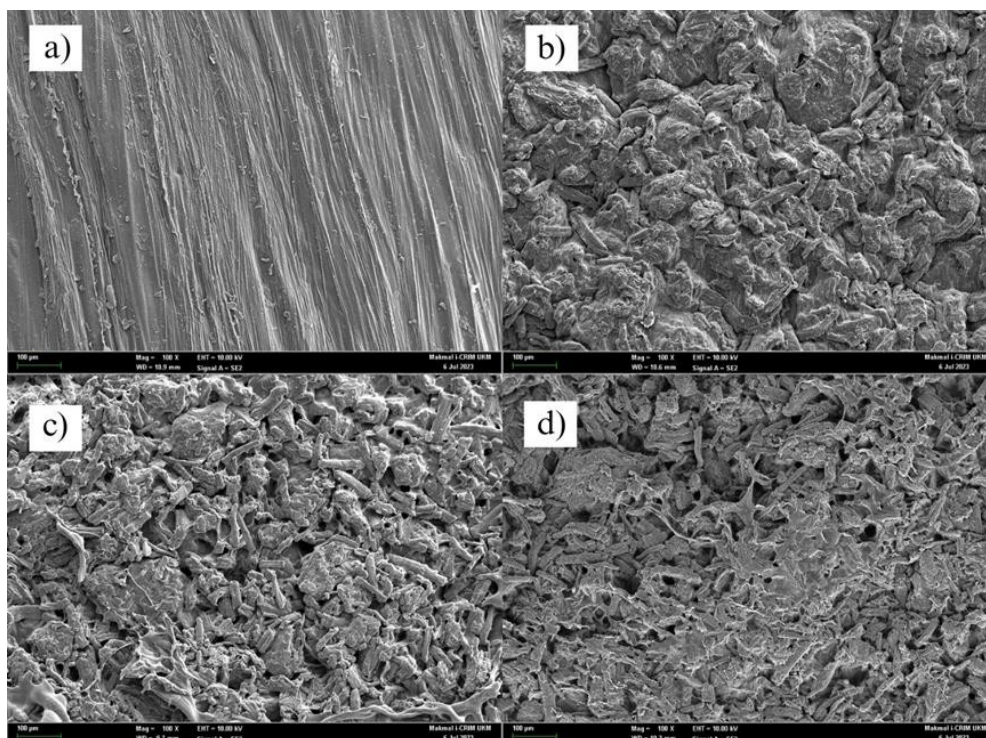
RAJAH 2(a). Spektrum FTIR aerogel PVA



RAJAH 2(b). Spektrum FTIR aerogel pengubahsuaian PVA/4%MCC



RAJAH 3. Keratan rentas sampel aerogel pada skala $20\ \mu\text{m}$ dengan pembesaran 500 x, a) aerogel PVA, b) aerogel PVA/2%MCC, c) aerogel PVA/4%MCC dan d) aerogel PVA/8%MCC



RAJAH 4. Permukaan sampel aerogel pada skala $10\ \mu\text{m}$ dengan pembesaran 100 x, a) aerogel PVA, b) aerogel PVA/2%MCC, c) aerogel PVA/4%MCC dan d) aerogel PVA/8%MCC

PENGANALISIS JERAPAN FIZIKAL

Jadual 1 menunjukkan ringkasan keputusan bagi analisis jerapan fizikal yang telah dijalankan kepada sampel aerogel A, C dan D yang terhasil. Luas permukaan bagi sampel aerogel A, C dan D masing-masing adalah 0.8256 m²/g, 2.1302 m²/g dan 1.0628 m²/g. Berdasarkan data yang diperolehi, aerogel yang tidak ditambah dengan MCC (Sampel A) mempunyai luas permukaan yang paling kecil berbanding sampel lain, kemudian, berlaku peningkatan terhadap luas permukaan apabila 4%MCC telah ditambah ke dalam komposit aerogel PVA (Sampel C). Penambahan MCC sebanyak 4% kepada komposit aerogel PVA telah menghasilkan aerogel dengan luas permukaan tertinggi. Hal ini kerana, MCC berinteraksi pada komponen PVA dalam komposit aerogel dan membentuk rangkaian 3D, justeru, telah membentuk liang pada struktur dalaman aerogel yang meningkatkan jumlah luas permukaannya. Tambahan pula, oleh kerana MCC merupakan pengisi dengan luas permukaan yang tinggi, ia secara tidak langsung dapat menyumbang kepada luas permukaan keseluruhan bahan komposit. Justeru, dapat menyebabkan peningkatan jumlah luas permukaan (Luo et al. 2019). Akan tetapi, apabila kandungan MCC ditingkatkan kepada 8% (sampel D), nilai luas permukaan aerogel menunjukkan penurunan. Sampel D mempunyai luas permukaan yang lebih rendah daripada sampel C, namun lebih tinggi daripada sampel A. Hal ini dapat dikaitkan dengan jenis liang yang terhasil dalam sampel aerogel tersebut. Sampel D mempunyai liang yang tertutup, manakala sampel C mempunyai liang yang saling bersambung dan terbuka. Ini kerana, struktur dalaman sampel D terlalu padat dan menyebabkan keruntuhan liang, manakala sampel C mempunyai penyebaran liang yang sekata. Justeru, bilangan liang yang tersedia untuk penjerapan gas N₂ telah berkurang dan menyebabkan sampel D mempunyai luas permukaan yang lebih rendah bagi penjerapan gas N₂ (Gong et al. 2019). Tambahan pula, keputusan yang diperolehi daripada kaedah analisis ini adalah selari dengan keputusan yang diperolehi daripada analisis struktur dalaman aerogel dengan menggunakan SEM.

Jumlah isi padu liang bagi sampel A, C, dan D masing-masing adalah 0.000701 cm³/g, 0.002277 cm³/g dan 0.001228 cm³/g. Berdasarkan data yang diperolehi, sampel

A mempunyai jumlah isi padu liang terendah. Hal ini kerana, sampel A mempunyai jumlah liang yang rendah berbanding sampel lain. Kemudian, peningkatan jumlah isi padu liang dapat dilihat pada sampel C. Ini kerana, sampel C mempunyai jumlah liang yang paling tinggi. Penyebaran MCC yang sekata membuatkan sampel C mempunyai liang yang tidak runtuh, justeru dapat menyumbang kepada peningkatan jumlah isi padu liang. Seterusnya, penurunan jumlah isi padu liang dapat dilihat bagi sampel D. Hal ini dapat dikaitkan dengan kepadatannya, kerana keruntuhan liang yang berlaku pada struktur dalaman sampel tersebut telah menutup sebahagian liang dan mengurangkan keliangannya (Gong et al. 2019). Oleh itu, ia membuatkan jumlah isi padu liangnya menjadi lebih rendah berbanding sampel C namun lebih tinggi daripada sampel A.

GONIOMETER SUDUT SENTUH

Berdasarkan Rajah 5 dan Jadual 2, nilai sudut sentuh yang terhasil bagi sampel A, B, C dan D masing-masing adalah 72.90°, 99.27°, 105.52° dan 143.13°. Daripada data yang diperolehi, dapat disimpulkan bahawa sampel B, C dan D mempunyai sifat hidrofobik dengan nilai sudut sentuh melebihi 90° dan ia menunjukkan bahawa permukaan aerogel tersebut mempunyai keafinan yang rendah terhadap air dan akan menolak air (Law 2014). Daripada data yang diperolehi, dapat diperhatikan bahawa nilai sudut sentuh air semakin meningkat apabila kandungan MCC dalam komposit aerogel PVA meningkat. Hal ini kerana, apabila kandungan MCC semakin meningkat, jumlah kumpulan hidroksil aktif yang boleh bertindak balas dengan klorotrimetilsilana semasa proses salutan akan meningkat, maka, salutan silana yang menyalut permukaan aerogel akan lebih banyak dihasilkan (Gong et al. 2019). Tambahan pula, salutan silana yang terhasil daripada tindak balas dengan klorotrimetilsilana telah menurunkan tenaga permukaan aerogel, maka, permukaan aerogel tidak akan tertarik kepada air dan akan mengurangkan tahap kebolehbasaannya (Mahadik et al. 2011). Selain daripada itu, kekasaran permukaan aerogel juga turut menyumbang kepada nilai sudut sentuh yang terhasil. Hal ini kerana, kekasaran permukaan aerogel dapat menghasilkan poket

JADUAL 1. Keputusan analisis jerapan fizikal

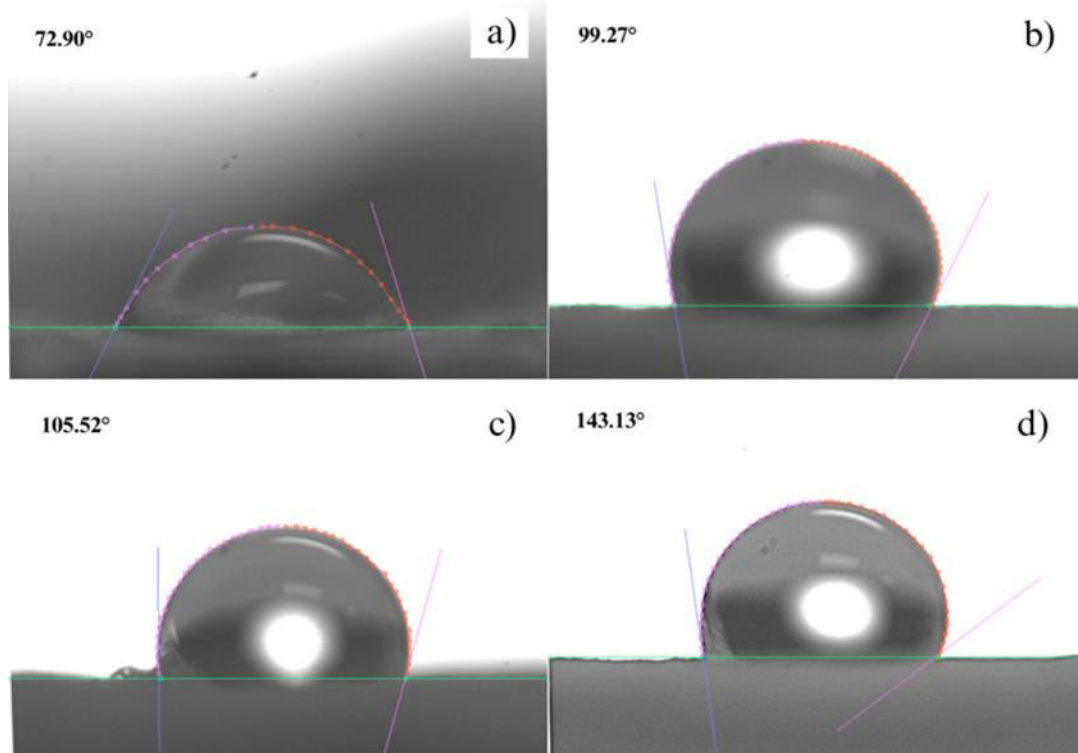
Sampel	MCC (%w/v)	Luas permukaan BET (m ² /g)	Jumlah isi padu liang BJH (cm ³ /g)
A	0	0.8256	0.000701
C	4	2.1302	0.002277
D	8	1.0628	0.001228

udara antara permukaannya dan air serta menghalang air yang dititiskan daripada melekap di permukaan. Oleh itu, sudut sentuh yang tinggi akan terhasil kerana tahap kebolehasan permukaan aerogel adalah rendah (Nowak et al. 2022). Justeru, selari dengan keputusan yang diperoleh daripada analisis morfologi permukaan aerogel dengan menggunakan SEM. Oleh itu, dapat diperhatikan bahawa, peningkatan kandungan MCC dalam komposit aerogel PVA mampu untuk meningkatkan sifat hidrofobiknya.

UJIAN MAMPATAN

Jadual 3 menunjukkan anjakan dan terikan mampatan setiap sampel aerogel pada daya maksimum. Anjakan

mampatan pada daya maksimum bagi sampel A, B, C dan D masing-masing adalah 14.18 mm, 11.46 mm, 12.08 mm dan 10.38 mm, manakala bagi terikan mampatan pada daya maksimum pula masing-masing adalah 78.76%, 63.69%, 67.12% dan 57.66%. Seperti yang dapat dilihat pada Jadual 3, penambahan MCC sebanyak 2 %w/v (sampel B) telah merendahkan anjakan dan terikan mampatan aerogel pada daya maksimum. Hal ini dapat dikaitkan dengan pembentukan liang pada struktur dalaman aerogel apabila MCC ditambah. Liang yang terhasil daripada rangkaian 3D aerogel mampu untuk mengagihkan daya yang dikenakan pada sampel aerogel tersebut, maka, ia dapat mengurangkan kesan daya terhadap sampel, justeru, sampel sukar untuk dimampatkan (Aney et al. 2022). Namun, apabila kandungan MCC ditingkatkan kepada 4



RAJAH 5. Sudut sentuh yang terhasil pada permukaan a) aerogel PVA, b) aerogel PVA/2%MCC, c) aerogel PVA/4%MCC dan d) aerogel PVA/8%MCC

JADUAL 2. Nilai sudut sentuh yang dihasilkan oleh setiap sampel

Sampel	MCC (%w/v)	Nilai sudut sentuh air (°)
A	0	72.90
B	2	99.27
C	4	105.52
D	8	143.13

%w/v (sampel C), peningkatan anjakan dan terikan mampatan aerogel pada daya maksimum dapat dilihat. Hal ini dapat dikaitkan dengan peningkatan jumlah liang yang terbentuk kerana ia meningkatkan keporosan aerogel tersebut. Malah, berdasarkan imej yang diperoleh daripada SEM, penyebaran MCC yang sekata telah membuatkan dinding liang semakin nipis. Oleh itu, daya maksimum dapat dikenakan dengan lebih mudah dan aerogel senang untuk dimampatkan (Woignier et al. 2009). Kemudian, penurunan anjakan dan terikan mampatan aerogel pada daya maksimum dapat dilihat sekali lagi apabila kandungan MCC ditingkatkan kepada 8%w/v. Hal ini kerana, kepadatan yang disebabkan oleh penyebaran MCC yang tidak sekata telah menyebabkan sebahagian liang runtuh, justeru, telah mengurangkan keporosan aerogel tersebut. Oleh itu, perubahan bentuk aerogel dapat dikurangkan kerana sukar untuk dimampatkan (Woignier et al. 2009).

PENENTUAN SIFAT HIDROFOBİK AEROGEL PVA

Oleh kerana sampel A mempunyai nilai sudut sentuh yang kurang daripada 90° , maka dari segi teori sampel tersebut disifatkan kurang hidrofobik. Bagi membuktikan bahawa sampel A mempunyai sifat hidrofobik, ujian ini telah dijalankan ke atasnya. Sifat hidrofobik aerogel telah ditentukan melalui kapasiti penyerapan air oleh aerogel tersebut. Jadual 4 menunjukkan ringkasan bagi keputusan yang diperoleh dan mendapati sampel A menunjukkan kadar penyerapan air yang sangat rendah. Justeru, membuktikan bahawa sampel A masih mempunyai sifat hidrofobik kerana mempunyai keafinan yang rendah terhadap air. Meskipun sampel tersebut tidak mengandungi MCC, PVA juga mempunyai kumpulan hidroksil yang boleh bertindak balas dengan klorotrimetilsilana (TMCS) semasa proses salutan. Oleh itu, salutan silana berlaku dan bertindak balas dengan aerogel PVA. Sudut sentuh bagi sampel A adalah rendah dan kurang daripada 90° adalah disebabkan faktor permukaan aerogel yang tidak rata dan beralun, justeru, membuatkan bacaan nilai sudut sentuh tidak tepat.

PENENTUAN KAPASITI PENYERAPAN MINYAK AEROGEL PVA/MCC

Bagi tujuan aplikasi, penentuan kapasiti penyerapan minyak setiap sampel aerogel yang dihasilkan telah dilakukan bagi mengetahui potensi setiap aerogel dalam memisahkan minyak daripada air. Proses ini telah diulang sebanyak 3 kitaran bagi memperoleh purata kapasiti penyerapan minyak setiap aerogel. Jadual 5 menunjukkan ringkasan bagi keputusan yang telah diperoleh. Secara purata, kapasiti penyerapan minyak bagi sampel A, B, C dan D masing-masing adalah 0.13 g/g, 0.40 g/g, 0.55 g/g dan 0.28 g/g. Berdasarkan data yang diperoleh, aerogel yang tidak mengandungi MCC mempunyai purata kapasiti penyerapan minyak yang paling rendah. Kemudian, apabila MCC ditambah dan kandungannya ditingkatkan daripada 2% sehingga 4%, peningkatan purata kapasiti penyerapan minyak dapat dilihat. Hal ini dapat dikaitkan dengan keputusan yang diperoleh daripada analisis penyerapan fizikal dan SEM. Daripada analisis tersebut, dapat dilihat bahawa, semakin tinggi kandungan MCC sehingga 4%, semakin tinggi jumlah luas permukaan dan jumlah isi padu liang kerana penambahan MCC kepada komposit dapat membentuk liang yang lebih banyak pada struktur dalamnya. Oleh itu, jumlah minyak yang dapat menyerap masuk ke dalam struktur liang aerogel akan bertambah, maka akan meningkatkan keupayaannya untuk menyerap minyak. Namun, penurunan dapat dilihat pada penambahan MCC sebanyak 8%. Hal ini dapat dikaitkan dengan penyebaran MCC yang tidak sekata dalam struktur dalaman sampel A kerana ia telah menyebabkannya terlalu padat dan keruntuhan liang berlaku. Justeru, ia telah merendahkan jumlah luas permukaan dan isi padu liang sampel, maka, jumlah minyak yang dapat menyerap masuk akan berkurang, sekali gus menurunkan kapasiti minyak yang dapat diserap oleh aerogel tersebut. Di samping itu, data juga menunjukkan bahawa kapasiti penyerapan minyak bagi setiap sampel aerogel mengalami penurunan selepas setiap kitaran. Oleh kerana setiap kitaran menggunakan sampel yang sama, terdapat kemungkinan bahawa sebahagian kecil sisa minyak masak masih kekal

JADUAL 3. Keputusan ujian mampatan bagi setiap sampel aerogel

Sampel	Anjakan mampatan pada daya maksimum (mm)	Terikan mampatan (Anjakan) pada daya maksimum (%)
A	14.18	78.76
B	11.46	63.69
C	12.08	67.12
D	10.38	57.66

berada di dalam aerogel kerana ia hanya dijemur pada suhu bilik (Jiang et al. 2017). Kaedah yang digunakan tidak berkesan untuk mengeluarkan semua sisa minyak daripada kitaran sebelumnya. Oleh itu, jumlah liang yang tersedia

untuk menyerap minyak pada kitaran selanjutnya akan berkurang, justeru, akan menyebabkan penurunan kapasiti penyerapan minyak aerogel (Zhang & Zhang 2020).

JADUAL 4. kapasiti penyerapan air sampel PVA

Sampel	Kapasiti penyerapan minyak (g/g)			Purata kapasiti penyerapan minyak (g/g)
	Kitaran 1	Kitaran 2	Kitaran 3	
A	0.011	0.013	0.035	0.020±0.015

JADUAL 5. Kapasiti penyerapan minyak setiap sampel aerogel

Sampel	Kapasiti penyerapan minyak (g/g)			Purata kapasiti penyerapan minyak (g/g)
	Kitaran 1	Kitaran 2	Kitaran 3	
A	0.15	0.13	0.12	0.13±0.3
B	0.52	0.31	0.37	0.40±0.12
C	0.82	0.45	0.37	0.55±0.27
D	0.37	0.21	0.27	0.28±0.9

KESIMPULAN

Aerogel PVA/MCC hidrofobik telah berjaya dihasilkan dalam kajian ini melalui kaedah pengeringan sejuk beku dan pemendapan wap kimia. Ia telah disintesis dengan menggunakan PVA sebagai matriks komposit dan MCC sebagai pengisi. Kemudian, permukaannya telah disalut dengan menggunakan TCMS. Dalam kajian ini, kandungan MCC bagi setiap sampel aerogel telah dimanipulasikan iaitu sebanyak 0%, 2%, 4% dan 8% manakala kandungan PVA telah dimalarkan iaitu sebanyak 10%. Sehubungan dengan itu, setiap sampel aerogel telah dianalisis dan dicirikan menggunakan FTIR, SEM, penganalisis jerapan fizikal, goniometer sudut sentuh dan mesin ujian universal bagi mengkaji kesan kandungan MCC terhadap ciri aerogel yang terhasil. Melalui analisis FTIR, kehadiran kumpulan berfungsi silanol (Si-OH) dapat dikesan pada komposit aerogel yang dihasilkan. Di samping itu, daripada analisis SEM, dapat diketahui bahawa peningkatan kandungan MCC kepada komposit aerogel PVA dapat meningkatkan keliatan aerogel dan membuatkan permukaannya semakin kasar. Melalui analisis jerapan fizikal, didapati bahawa aerogel yang ditambah dengan 4%MCC

mempunyai luas permukaan dan jumlah isi padu liang tertinggi iaitu masing-masing adalah 2.1302 m²/g dan 0.002277 cm³/g. Penambahan MCC telah menambah baik kekakuan aerogel dengan merendahkan anjakan dan terikan mampatan apabila daya maksimum dikenakan berikutan hasil keputusan menggunakan mesin ujian universal. Aerogel PVA/8%MCC telah menunjukkan nilai anjakan dan mampatan terendah iaitu masing-masing adalah 10.38 mm dan 57.66%. Di samping itu, PVA/8%MCC juga menunjukkan nilai sudut sentuh tertinggi iaitu 143.13°. Akhir sekali, bagi tujuan aplikasi, komposit aerogel PVA/MCC yang dihasilkan telah menjalani ujian penentuan kapasiti penyerapan minyak. Hasil ujian mendapati bahawa penambahan MCC kepada komposit aerogel PVA telah meningkatkan kapasiti penyerapan minyak aerogel. PVA/4%MCC menunjukkan kapasiti penyerapan minyak yang tertinggi secara purata iaitu 0.55 g/g, justeru, telah membuktikan kemampuan komposit aerogel dalam menyerap minyak. Kesimpulannya, secara keseluruhan, semua objektif dalam kajian ini telah tercapai dan membuktikan bahawa komposit aerogel PVA/MCC mempunyai potensi yang besar sebagai penyerap yang berkesan untuk memisahkan minyak dan air.

PENGHARGAAN

Penulis ingin berterima kasih kepada Universiti Kebangsaan Malaysia (UKM) dan Kementerian Pendidikan Tinggi (KPT) atas pembiayaan projek ini di bawah geran penyelidikan (FRGS/1/2022/STG05/UKM/01/1). Tidak lupa juga kepada Fakulti Sains dan Teknologi UKM serta *Center for Research dan Instrumentation (CRIM)*, UKM bagi kemudahan makmal dan instrumentasi.

RUJUKAN

- Aney, S., Schettler, J., Schwan, M., Milow, B. & Rege, A. 2022. Insights into the micromechanics of organic aerogels based on experimental and modeling results. *Advanced Engineering Materials* 24(1): 2100095.
- Aslam, S., Sekkat, A., Vergnes, H., Esvan, J., Pugliara, A., Samélor, D., Eshraghi, N., Vahlas, C., Auvergniot, J. & Caussat, B. 2023. A new route to apply nanometric alumina coating on powders by fluidized bed chemical vapor deposition. *Chemical Engineering Journal Advances* 16: 100554.
- Atia, M.A., Smejkal, P., Gupta, V., Haddad, P.R. & Breadmore, M.C. 2023. Chemical vapour deposition in narrow capillaries: Electro-osmotic flow control in capillary electrophoresis. *Analytica Chimica Acta* 1280: 341847.
- Chang, Q., Guo, S. & Zhang, X. 2023. Radiation shielding polymer composites: Ray-interaction mechanism, structural design, manufacture and biomedical applications. *Materials & Design* 233: 112253.
- El-Sakhawy, M. & Hassan, M.L. 2007. Physical and mechanical properties of microcrystalline cellulose prepared from agricultural residues. *Carbohydrate Polymers* 67(1): 1-10.
- Gong, X., Wang, Y., Zeng, H., Betti, M. & Chen, L. 2019. Highly porous, hydrophobic, and compressible cellulose nanocrystals/poly(vinyl alcohol) aerogels as recyclable absorbents for oil-water separation. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering* 7(13): 11118-11128.
- Jiang, J., Zhang, Q., Zhan, X. & Chen, F. 2017. Renewable, biomass-derived, honeycomblike aerogel as a robust oil absorbent with two-way reusability. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering* 5(11): 10307-10316.
- Kathi, S. & Mahmoud, A.E.D., 2024. Trends in effective removal of emerging contaminants from wastewater: A comprehensive review. *Desalination and Water Treatment* 317: 100258.
- Launer, P.J. 2013. Infrared analysis of organosilicon compounds: Spectra-structure correlations. In *Silicon Compounds: Silanes & Silicones*, 3rd. ed., edited by Arkles, B. & Larson, G.L. Morrisville: Gelest Inc. pp. 175-178.
- Law, K.Y. 2014. Definitions for hydrophilicity, hydrophobicity, and superhydrophobicity: Getting the basics right. *Journal of Physical Chemistry Letters* 5(4): 686-688.
- Luo, Q., Huang, X., Gao, F., Li, D. & Wu, M. 2019. Preparation and characterization of high amylose corn starch- microcrystalline cellulose aerogel with high absorption. *Materials* 12(9): 1420.
- Mahadik, D.B., Rao, A.V., Rao, A.P., Wagh, P.B., Ingale, S.V. & Gupta, S.C. 2011. Effect of concentration of trimethylchlorosilane (TMCS) and hexamethyldisilazane (HMDZ) silylating agents on surface free energy of silica aerogels. *Journal of Colloid and Interface Science* 356(1): 298-302.
- Nowak, B., Bonora, M., Zuzga, M., Werner, L., Jackiewicz-Zagórska, A. & Gac, J.M. 2022. MTMS-based aerogel structure deposition on polypropylene fibrous filter - Surface layer effect and distribution control for improvement of oil aerosol separation properties. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 10(5): 108410.
- Ozen, E., Yildirim, N., Dalkilic, B. & Ergun, M.E. 2021. Effects of microcrystalline cellulose on some performance properties of chitosan aerogels. *Maderas: Ciencia y Tecnologia* 23: 1-10.
- Rafieian, F., Hosseini, M., Jonoobi, M. & Yu, Q. 2018. Development of hydrophobic nanocellulose-based aerogel via chemical vapor deposition for oil separation for water treatment. *Cellulose* 25(8): 4695-4710.
- Rong, N., Xu, Z., Zhai, S., Zhou, L. & Li, J. 2021. Directional, super-hydrophobic cellulose nanofiber/polyvinyl alcohol/montmorillonite aerogels as green absorbents for oil/water separation. *IET Nanobiotechnology* 15(1): 135-146.
- Seera, S.D.K., Kundu, D. & Banerjee, T. 2020. Physical and chemical crosslinked microcrystalline cellulose-polyvinyl alcohol hydrogel: Freeze-thaw mediated synthesis, characterization and *in vitro* delivery of 5-fluorouracil. *Cellulose* 27(11): 6521-6535.
- Tai, M.H., Mohan, B.C., Yao, Z. & Wang, C.H. 2022. Superhydrophobic leached carbon Black/Poly(vinyl) alcohol aerogel for selective removal of oils and organic compounds from water. *Chemosphere* 286(Part 1): 131520.
- Viswanathan, S., Pallikkara, A.A., Muhammed, F. & Kallingal, A. 2024. Graphitic carbon nitride based fluorine-free hydrophobic sponges for the mitigation of microplastics, oil spillage, and harmful microbial growth in water. *Materials Today Sustainability* 26: 100751.
- Woignier, T., Hafidi Alaoui, A., Primera, J. & Phalippou, J. 2009. Mechanical properties of aerogels: Brittle or plastic solids?. *Key Engineering Materials* 391: 27-44.

- Yoshimura, S., Sugimoto, S., Takeuchi, T., Murai, K. & Kiuchi, M. 2023. Low energy Si^+ , SiCH_5^+ , or C^+ beam injections to silicon substrates during chemical vapor deposition with dimethylsilane. *Helvion* 9(8): e19002.
- Zikalala, N.E., Azizi, S., Thema, F.T., Cloete, K.J., Zinatizadeh, A.A., Mokrani, T., Mketi, N. & Maaza, M.M., 2024. Modification of graphene-based nanomaterials with gamma irradiation as an eco-friendly approach for diverse applications: A review. *FlatChem*. 45: 100662.
- Zhang, H. & Zhang, J. 2020. The preparation of novel polyvinyl alcohol (PVA)-based nanoparticle/carbon nanotubes (PNP/CNTs) aerogel for solvents adsorption application. *Journal of Colloid and Interface Science* 569: 254-266.
- Zheng, Q., Cai, Z. & Gong, S. 2014. Green synthesis of polyvinyl alcohol (PVA)-cellulose nanofibril (CNF) hybrid aerogels and their use as superabsorbents. *Journal of Materials Chemistry A* 2(9): 3110-3118.

*Pengarang untuk surat menyurat; email: gading@ukm.edu.my