Komposit Mesoporous Silika Material dan Fe₃O₄ Nanopartikel untuk Meningkatkan Efektivitas Reaksi Fenton

Wenny Irawaty¹, Christian Julius Wijaya¹ dan Sandy Budi Hartono^{1*}.

¹Program Studi Teknik Kimia, Universitas Katolik Widya Mandala Surabaya, Surabaya, Kalijudan 37,60114.

*Corresponding Author : sandy@ukwms.ac.id.

Abstrak

Seiring dengan berkembangnya teknologi dalam proses industri dan dihasilkannya inovasi-inovasi baru yang mendukung terbentuknya produk-produk baru, maka salah satu produk samping adalah bertambahnya jenis-jenis limbah yang cukup kompleks untuk dapat diuraikan. Metoda AOP (Advanced Oxidation Process) dimana salah satunya adalah Proses Fenton menjadi salah satu pilihan dalam menangani jenis limbah yang cukup kompleks. Proses Fenton dengan menggunakan katalis heterogen, diantaranya menggunakan katalis padat memiliki keunggulan dalam aplikasinya. Penggunaan *magnetic nanoparticles* berbasis Fe₃O₄ memungkinkan proses Fenton berlangsung secara efektif dan efisien dengan memungkinkan untuk katalis dapat di *recycle*. *Magnetic nanoparticles* (Fe₃O₄) memiliki keterbatasan dalam hal stabilitas karena mudah teragregasi. Untuk memaksimalkan manfaat yang diperoleh dari *magnetic nanoparticles* (Fe₃O₄), maka pembentukan komposit material antara *mesoporous silica materials* dan *magnetic nanoparticles* (Fe₃O₄) menjadi pilihan utama. Artikel ini akan memberikan review singkat berkaitan khususnya terhadap: proses Fenton, *mesoporous silica nanoparticles* (MSN) dan bagaimana membentuk komposit keduanya untuk meningkatkan reaksi Fenton.

Kata kunci: mesoporous silika, Fe₃O₄ nanopartikel, reaksi fenton, katalis heterogen, material komposit.

Abstract

With the rapid development of technology and innovation in industrial processes that support the formation of new products, one of the by-products is the increasing types of waste that are difficult to manage. The AOP (Advanced Oxidation Process) method, one of which is the Fenton Process, is one of the options for treatment types of waste that are quite complex. The Fenton process using heterogeneous catalysts, including using solid catalysts has advantages in its application. Fe₃O₄-based Magnetic nanoparticles allow the Fenton process to take place effectively and efficiently by applying the catalyst to be recycled. Magnetic nanoparticles (Fe₃O₄) have limitations in terms of stability because they are easily aggregated. To maximize the benefits obtained from Magnetic nanoparticles (Fe₃O₄), the formation of a composite material between mesoporous silica materials and magnetic nanoparticles (Fe₃O₄) is the main choice. This article will provide a brief review related specifically to: the Fenton process, mesoporous silica nanoparticles (MSN), and how to synthesize the composite and increase the Fenton reaction performance.

Keywords : *mesoporous silica, Fe₃O₄ nanoparticles, fenton reaction, heterogeneous catalysts, composite materials.*

PENDAHULUAN

Perkembangan teknologi yang sangat cepat dalam beberapa dekade terakhir memungkinkan dihasilkannya produk-produk inovatif yang sangat bermanfaat bagi manusia. Seiring dengan perkembangan tersebut dampak samping yang muncul adalah dihasilkannya berbagai jenis limbah dengan struktur molekul yang cukup kompleks (Gonzales, 2024).

Pengolahan limbah secara umum dapat menggunakan metoda fisika, kimia dan biologi. Dimana untuk jenis-jenis limbah yang sulit untuk diuraikan, maka pengolahan secara kimiawi masih menjadi pilihan utama. Untuk bahan-bahan organik kompleks (Walling, 2021).

Advanced Oxidation Process (AOP) adalah salah satu metode kimiawi untuk mendegradasi berbagai senyawa dalam limbah. Oksidasi Fenton adalah termasuk dalam AOP. Proses oksidasi Fenton dapat digunakan untuk menguraikan berbagai jenis senyawa yang sulit untuk terdegradasi (*recalcitrant organic pollutants*) seperti phenol, bahan sisa pestisida, bahan bahan dari produksi farmasi atau bahan organik lainnya, bahkan yang termasuk dalam limbah radioaktif (*radioactive waste*) (Walling, 2021).

Dalam Oksidasi Fenton digunakan hidrogen peroksida (H_2O_2) dan katalis terlarut ion Fe^{2+} untuk menghasilkan radikal hidroksil ($\cdot OH$). Radikal hidroksil ini memiliki potensial oksidasi yang sangat tinggi yaitu antara 2,0 – 2,8 E°(V). Potensial oksidasi yang tinggi ini sangat berguna untuk mendegradasi berbagai bahan dalam limbah yang sulit terurai. Proses Fenton memiliki keunggulan lain yaitu penggunaan bahan kimia yang relative murah serta prosesnya berlangsung pada kondisi tekanan maupun suhu ruang (Gonzales, 2024).

Keterbatasan dalam penggunaan katalis terlarut adalah kemungkinan kehilangan sebagian dari katalis dan pembentukan sludge waste. Hal ini dapat diatasi dengan penggunaan katalis heterogen (Gonzales, 2024).

HASIL ANALISIS BAGIAN INTI

Pilihan jenis katalis heterogen yang dapat digunakan dalam proses Fenton cukup beragam diantaranya: Cu, Cr, Mn dikombinai dengan Fe atau Cu, Co, Cerium dan Ru. Diantara jenis katalis heterogen tersebut oksidasa besi atau iron oxides merupakan senyawa yang paling banyak diteliti (Negin, 2021). Hal ini membuat informasi mengenai iron oxides telah cukup

banyak diperoleh untuk dapat digunakan dalam berbagai kondisi pengolahan limbah.

Selain itu, keunggulan dari penggunaan katalis heterogen berbasis Iron (Fe) adalah biayanya relative murah, ramah lingkungan, mudah penyimpanannya, mudah diperoleh dan memiliki aktivitas katalis yang tinggi (Negin, 2021).

Iron oxide dapat diperoleh dari *iron containing soil*, pyrite, hematite dan juga magnetite. Wei *et al* dalam penelitiannya memanfaatkan magnetite nanoparticles (Fe_3O_4) untuk mendegradasi Phenol. Wei *et al*. menunjukkan penggunaan Fe_3O_4 dapat mendegradasi phenol dan menurunkan COD dengan capaian sebesar 100 persen untuk Phenol dan 70 persen untuk COD. Suatu capaian yang sangat signifikan (Wei, 2013)

Salah satu kelemahan utama dalam penggunaan senyawa iron oxide nanopartikel dan senyawa oksida logam pada umumnya adalah terjadinya agregasi/pengelompokan partikel katalis, yang tentunya akan menurunkan potensi dari katalis heterogen. Untuk menangani hal tersebut, maka penggunaan bahan atau material berpori dapat meningkatkan loading/konsentrasi sekaligus mempertahankan *dispersibility*. Dengan demikian diharapkan dapat meningkatkan aktivitas dari katalis (Ahmadi, 2022).

Salah satu jenis material berpori yang dalam dua dekade terakhir banyak diteliti untuk berbagai aplikasi adalah mesoporous silica materials (MS). MS banyak diteliti untuk aplikasi seperti : pengantaran obat, suport untuk katalis, sebagai adsorbent dalam proses kimiawai, biologi dan aplikasi untuk peningkatan kualitas lingkungan (Wei, 2013).

Mesoporous silica (MS) materials mulai dikenal semenjak tahun 1992 ketika para ilmuwan dari Mobile research development berhasil membuat materi berpori, terstruktur dan memiliki ukuran pori yang cukup besar (Kresge, 1992). Semenjak penemuan tersebut , perkembangan penelitian terhadap mesoporous silica materials meningkat dengan sangat pesat. Berbagai jenis mesostruktur yang baru dihasilkan seperti SBA-15 (Zhao, 1998), FDU - 12 (Fan, 2003) dan group IBN (Han, 2005).

Komposit Fe-MSN menunjukkan potensi yang sangat baik untuk digunakan dalam water purification system. Fe-MSN dapat diregenerasi dengan tetap mempertahankan performancenya. Fe-MSN disintesa dengan menggunakan metode

Chemical Vapor Deposition (CVD) untuk menghasilkan Oksida Fe nanoparticle dengan ukuran partikel ~ 10 nm. MS yang digunakan adalah Komersial MS dengan ukuran partikel : 250 - 500 μ M dan ukuran pori rata-rata 15 nm (Hong, 2019).

Cu-MS berhasil digunakan untuk menguraikan senyawa chlorophenol dalam air limbah, sehingga menghasilkan penurunan konsentrasi yang signifikan. Degradasi chlorophenol dengan memanfaatkan komposit Cu dalam *mesoporous silica materials* (MS) jenis SBA-15 untuk menopang reaksi *Fenton-like* (Hu, 2021).

Negin *et al.* telah menyusun review paper yang memberikan informasi cukup lengkap mengenai pembentukan komposit Fe-Mesoporous Silica (Fe-MS) untuk meningkatkan efektifitas reaksi Fenton. Review paper tersebut meliputi sebagian besar penelitian terkait pada periode: 2005 – 2020. Peneliti Nigen *et al* berfokus pada *mesoporous silica materials* dengan jenis : SBA-15 dan FDU-12 (Negin, 2021).

Pada artikel ini, diberikan review singkat berkaitan dengan pemanfaatan Fe-MS, khususnya pada mesoporous silica nanoparticles (MSN) untuk membentuk komposit dengan Fe (Fe-MSN). Mengingat masih terbatasnya review paper khususnya yang mengulas Fe-MSN.

Fe-Silica nanoparticles telah digunakan untuk oksidasi Toluene. Pada penelitian ini digunakan silica nanoparticle yang membentuk pori diantara nanoparticle yang ada. Penelitian juga menunjukkan jumlah dari Fe pada komposit mempengaruhi pembentukan *iron complexes*. Fe-Silica nanoparticle menunjukkan efisiensi katalis yang tinggi (Popova, 2013).

Fe-MSN digunakan untuk mengkatalisasi oksidasi dari cyclohexane dengan menggunakan hydrogen peroksida. Keunggulan dari Fe-MSN ini adalah: konversi reaksi tinggi, waktu reaksi yang singkat, prosesnya mudah, dan dapat digunakan dengan berbagai jenis pelarut. Fe-MSN memiliki magnetic properties. Fe-MSN menunjukkan kemampuan *recyclability* yang baik. Performance Fe-MSN dapat dipertahankan walau setelah lima kali proses recycle. Pore size MSN menurun ketika menjadi komposit Fe-MSN dari 3.5 nm menjadi 2.6 nm (Sazegar, 2017).

Oksida Fe-Mesoporous silica-Nano composite digunakan untuk mengurangi methylene blue. *Mesoporous silica* membuat

nanomaterials tersimpan dalam bagian nanomaterials, sehingga mencegah terjadinya agglomerasi dari nanopartices (Saod, 2025).

Ukuran MSN yang dalam range nanometer memberikan luas kontak yang lebih besar sehingga memungkinkan interaksi antara katalis dan senyawa yang akan terdegradasi semakin intensif dan pada akhirnya diharapkan dapat meningkatkan efektivitas Reaksi Fenton.

Untuk membentuk komposit Fe-MSN , maka diberikan gambaran umum sintesa mesoporous silica nanoparticles (MSN) untuk menstabilisasi Fe₃O₄ nanoparticles di dalam pori-pori MSN.

Metoda pembuatan MSN yang banyak digunakan adalah mengikuti metoda dari teknik sintesa yang dihasilkan oleh tim peneliti di *Institute of Bioengineering and Nanotechnology*, Singapura. Metoda tersebut menghasilkan empat jenis *mesoporous silica nanoparticles*(MSN) yaitu IBN-1, IBN-2,, IBN-3 dan IBN-4 dengan ukuran partikel anatar 50 sampai 300 nm. Ukuran partikel ini jauh lebih kecil jika disbanding SBA-15, FDU-12 maupun generasi awal MCM-41 yang kesemuanya dalam range μ M (Han, 2005).

Penelitian sebelumnya menunjukkan Fe₃O₄ nanopartikel adalah jenis katalis heterogen untuk reaksi Fenton yang efektif, dengan kemampuan mendegradasi phenol pada rentang pH yang cukup luas. Kelebihan dan keunikan dari Fe₃O₄ adalah stabilitas yang tinggi dan tentunya mudah untuk dipisahkan karena memiliki properti magnet (Negin, 2021).

Dengan demikian, pemanfaatan kelebihan dari MSN dipadukan dengan Fe₃O₄ dapat menghasilkan katalis heterogen yang efektif dan ekonomis untuk mendukung Reaksi Fenton (Gambar 1) (Hartono, 2014).

Hal yang perlu diperhatikan pada saat mensintesa komposit Fe₃O₄-MSN adalah agar Fe₃O₄ nanopartikel tidak menutup pori MSN atau menghalangi aliran ke dalam pori. Untuk mengatasi hal tersebut dapat digunakan metoda *dual solvent* seperti pada Gambar 2. Dua jenis solvent yaitu: acetonitrile dan hexane yang memiliki karakter yang berbeda, digunakan untuk memastikan agar *magnetic nanoparticles* Fe₃O₄ terbentuk dalam pori IBN materials (Yiu, 2010).

RINGKASAN

Pada artikel ini diberikan gambaran umum mengenai pemanfaatan Fe-MS sebagai

katalis heterogen dalam reaksi Fenton. Selain itu ditambahkan pula pemanfaatan Fe-MSN sebagai katalis heterogen dalam proses oksidasi. Ukuran partikel, ukuran pori dan struktur yang unik dari MSN dibandingkan dengan MS, diharapkan dapat meningkatkan interaksi antara katalis dan komponen yang akan didegradasi. Namun tentunya ide ini membutuhkan penelitian lebih lanjut untuk

membuktikan hipotesa bahwa Fe-MSN dapat meningkatkan secara signifikan Reaksi Fenton. Mengingat masih terbatasnya penelitian yang secara langsung membandingkan performance Fe-MS maupun Fe-MSN.

Gambar 1. Skema Pembuatan Komposit Fe-Mesoporous Silica Nanoparticle (Fe-MSN)

Gambar 2. Metoda dua solven untuk pemuatan Fe_3O_4 dalam pori mesoporous silica

SIMPULAN DAN SARAN

Katalis heterogen khususnya jenis Oksida-Fe dapat meningkatkan reaktivitas proses Fenton. Untuk meningkatkan stabilitas dari Fe maka Fe dapat di imobilisasi dalam mesoporous silica materials jenis MS maupun MSN. Dimana kedua jenis *mesoporous silica* ini dapat meningkatkan stabilitas, *recyclability* dan efektivitas reaksi Fenton. Penelitian berkelanjutan untuk memodifikasi dari Fe-MS maupun Fe-MSN diharapkan dapat membuat proses defradasi Fenton semakin efektif dan ekonomis khususnya untuk penanganan senyawa kompleks dalam pengolahan berbagai jenis limbah.

UCAPAN TERIMAKASIH

Peneliti mengucapkan terimakasih atas dukungan pendanaan penelitian oleh LPPM Universitas Katolik Widya Mandala Surabaya (UKMS).

DAFTAR PUSTAKA

Ahmadi, Fatemeh, Sodagar-Taleghani, Arezo, Ebrahimnejad, Pedram, Pouya

Hadipour, Moghaddam, Seyyed Ebrahimnejad, Farzam, Asare-Addo, Kofi, Nokhodchi, Ali. 2022. A review on the latest developments of mesoporous silica nanoparticles as a promising platform for diagnosis and treatment of cancer. *International Journal of Pharmaceutics*, 625, 122099

Fan, Jie, Yu, Chengzhong, Gao, Feng, Lei, Jie Tian, Bozhi, Wang, Limin, Luo, Qian, Tu, Bo, Zhou, Wuzong, Zhao, Dongyuan. 2003. Cubic Mesoporous Silica with Large Controllable Entrance Sizes and Advanced Adsorption Properties. *Angewandte Chemie International Edition*, 42, 3146

Farhadian, Negin, Liu, Shiquan, Asadi, Anvar, Shahlaei, Mohsen, Moradi, Sajad. 2021. Enhanced heterogeneous Fenton oxidation of organic pollutant via Fe-containing mesoporous silica composites: A review. *Journal of Molecular Liquids*. 321, 114896

- González-Rodríguez, J., Conde, J. J., Vargas-Osorio, Z., Vázquez-Vázquez, C., Piñeiro, Y., Rivas, J., Feijoo, G., Moreira, M. T. 2024. LED-driven photo-Fenton process for micropollutant removal by nanostructured magnetite anchored in mesoporous silica. *Journal of Environmental Management*, 349, 119461.
- Han, Yu, Ying, Jackie Y. 2005. Generalized Fluorocarbon-Surfactant-Mediated Synthesis of Nanoparticles with Various Mesoporous Structures. *Angewandte Chemie International Edition*, 44, 288
- Hartono, S. B., Yu M Fau - Gu, Wenyi., Gu W Fau -, Yang, Jie, Yang J Fau, Strounina, Ekaterina, Strounina E Fau - Wang, Xiaolin, Wang X Fau, Shizhang Qiao S Fau - Yu, Chengzhong Yu. 2014. Synthesis of multi-functional large pore mesoporous silica nanoparticles as gene carriers. *Nanotechnology*, 1361-6528
- Hong, Yul, Cha, Byeong Jun., Kim, Young Dok, Seo, Hyun Ook. 2019. Mesoporous SiO₂ Particles Combined with Fe Oxide Nanoparticles as a Regenerative Methylene Blue Adsorbent. *American Chemical Society*, 4, 9745
- Hu, Huanting, Miao, Kangkang, Luo, Xiaolin, Guo, Sifan, Yuan, Xueqin, Pei, Fei, Qian, Huaming, Feng, Guodong. 2021. Efficient Fenton-like treatment of high-concentration chlorophenol wastewater catalysed by Cu-Doped SBA-15 mesoporous silica, *Journal of Cleaner Production*, 31, 128632
- Kresge, C. T., Leonowicz, M. E., Roth, W. J., Vartuli, J. C., Beck, J. S. 1992. Ordered mesoporous molecular sieves synthesized by a liquid-crystal template mechanism, *Nature*, 359, 710
- Popova, Margarita, Ristić, Alenka, Lazar, Karoly, Maučec, Darja, Vassileva, Mihaela, Novak Tušar, Nataša. 2013. Iron-Functionalized Silica Nanoparticles as a Highly Efficient Adsorbent and Catalyst for Toluene Oxidation in the Gas Phase, *ChemCatChem*, 5,986
- Saod, Wahran M., Oliver, Ian W., Contini, Alessandro, Zholobenko, Vladimir. 2025. Synthesis and characterisation of an iron oxide mesoporous silica nanocomposite and its application in removal of methylene blue dye, *Journal of Molecular Structure*, 1319, 139390
- Sazegar, Mohammad Reza, Dadvand, Aysan, Mahmoudi, Ali. 2017. Novel protonated Fe-containing mesoporous silica nanoparticle catalyst: excellent performance cyclohexane oxidation, *RSC Advances*, 7, 27506
- Walling, Sam A., Um, Wooyong, Corkhill, Claire L., Hyatt, Neil C. 2021. Fenton and Fenton-like wet oxidation for degradation and destruction of organic radioactive wastes, *npj Materials Degradation*, 5, 50
- Wang, W., Mao, Q., He, H., Zhou, M. 2013. Fe₃O₄ nanoparticles as an efficient heterogeneous Fenton catalyst for phenol removal at relatively wide pH values, *Water Science and Technology*, 0273-1223
- Yiu, Humphrey H. P. Niu, Hong-jun, Biermans, Ellen van Tendeloo, Gustaaf, Rosseinsky, Matthew J. 2010. Designed Multifunctional Nanocomposites for Biomedical Applications, *Advanced Functional Materials*, 20, 1599
- Zhao, Dongyuan, Feng, Jianglin, Huo, Qisheng, Melosh, Nicholas, Fredrickson, Glenn H., Chmelka, Bradley F., Stucky, Galen D. 1998. Triblock Copolymer Syntheses of Mesoporous Silica with

Periodic 50 to 300 Angstrom Pores,
Science, 279,