

MODIFIKASI SELULOSA BAKTERI BERBASIS AGEN KOPLING SILANE MPTMS DAN Si69 SEBAGAI *BIO-FILLER* FUNGSIONAL (STUDI FTIR DAN XRF)

*Silane Coupling Agent-Based Modification of Bacterial Cellulose
Using MPTMS and Si69 as Fungsional Bio-fillers (FTIR and XRF Study)*

Mili Purbaya

Pusat Penelitian Karet, Jl. Palembang – Pangkalan Balai Km. 29, Banyuasin 30953, Indonesia
Email: milipurbaya3107@gmail.com

Diterima 27 Januari 2026 / Direvisi 7 April 2026 / Disetujui 16 April 2026

Abstrak

Pengembangan *filler* ramah lingkungan untuk aplikasi karet menjadi perhatian penting dalam upaya mendukung material berkelanjutan. Selulosa bakteri memiliki potensi sebagai *bio-filler* karena kemurnian tinggi, struktur nanofiber tiga dimensi, dan sifat biodegradabilitas yang baik, namun sifat hidrofiliknya membatasi kompatibilitas dengan matriks karet yang bersifat hidrofobik. Penelitian ini bertujuan untuk merekayasa permukaan selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane berbasis sulfur, yaitu 3-mercaptopropyltrimethoxysilane (MPTMS) dan bis[3-(triethoxysilyl)propyl] polysulfide (Si69), dengan penambahan *limonene dioxide* sebagai komponen pendukung berbasis bio untuk menghasilkan fungsionalisasi kimia yang optimum. Modifikasi dilakukan melalui proses silanisasi dengan variasi formulasi MPTMS (Formula A–D) dan Si69 (Formula E–H). Keberhasilan modifikasi dievaluasi menggunakan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR) untuk mengidentifikasi pembentukan gugus fungsional baru dan X-Ray Fluorescence (XRF) untuk menganalisis komposisi unsur silikon dan sulfur. Hasil FTIR menunjukkan terbentuknya ikatan Si–O–C dan Si–O–Si pada selulosa bakteri termodifikasi, sedangkan analisis XRF mengonfirmasi peningkatan kandungan silikon dan sulfur setelah modifikasi. Sistem MPTMS dan Si69 menunjukkan karakteristik fungsionalisasi yang berbeda, untuk setiap struktur mercapto dan polisulfida.

Berdasarkan integrasi hasil FTIR dan XRF, Formula B dan Formula G ditetapkan sebagai formulasi optimum untuk sistem MPTMS dan Si69. Studi ini memberikan pemahaman fundamental mengenai modifikasi selulosa bakteri berbasis silane serta menjadi dasar konseptual bagi pengembangan *bio-filler* ramah lingkungan untuk aplikasi karet.

Kata kunci: selulosa bakteri, agen kopling silane, FTIR, XRF, *bio-filler*

Abstract

The development of environmentally friendly fillers for rubber applications has become an important issue in supporting sustainable materials. Bacterial cellulose has attracted considerable attention as a potential bio-filler due to its high purity, three-dimensional nanofiber structure, and good biodegradability. However, its hydrophilic nature limits its compatibility with hydrophobic rubber matrices, necessitating surface modification. This study aimed to engineer the surface of bacterial cellulose using sulfur-based silane coupling agents, namely 3-mercaptopropyltrimethoxysilane (MPTMS) and bis[3-(triethoxysilyl)propyl] polysulfide (Si69), with the addition of limonene dioxide as a bio-based supporting component to achieve effective chemical functionalization. Surface modification was carried out through a silanization process using various formulations of MPTMS (Formulas A–D) and Si69 (Formulas E–H). The success of the modification was evaluated by Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) to identify the formation of new functional groups and X-Ray

Fluorescence (XRF) to analyze changes in silicon and sulfur elemental composition. The FTIR results confirmed the formation of Si–O–C and Si–O–Si bonds on the modified bacterial cellulose, while XRF analysis revealed a significant increase in silicon and sulfur contents after modification. Distinct functionalization characteristics were observed between the MPTMS and Si69 systems, which are associated with their mercapto and polysulfide structures, respectively. Based on the integrated FTIR and XRF results, Formula B and Formula G were identified as the optimum formulations for the MPTMS and Si69 systems, respectively. This study provides fundamental insights into silane-based modification of bacterial cellulose and establishes a conceptual foundation for the development of environmentally friendly bio-fillers for rubber applications.

Keywords: bacterial cellulose, silane coupling agent, FTIR, XRF, bio-filler

Pendahuluan

Penggunaan *filler* merupakan aspek krusial dalam formulasi kompon karet karena berperan dalam meningkatkan sifat mekanik, ketahanan abrasi, dan stabilitas produk akhir. Hingga saat ini, *filler* konvensional seperti karbon hitam dan silika masih mendominasi industri karet karena efektivitasnya dalam memberikan efek penguatan. Namun demikian, kedua *filler* tersebut memiliki keterbatasan, terutama terkait dampak lingkungan dari proses produksinya, ketergantungan pada sumber daya tak terbarukan, serta densitas yang relatif tinggi yang dapat mempengaruhi karakteristik produk akhir (Chang, *et al.*, 2021; Cifriadi & Kinasih, 2014). Kondisi ini mendorong pengembangan *filler* alternatif berbasis material terbarukan yang lebih ramah lingkungan dan berkelanjutan.

Selulosa bakteri merupakan salah satu material berbasis bio yang menarik perhatian sebagai kandidat *bio-filler*. Selulosa bakteri disintesis oleh mikroorganisme tertentu dan memiliki struktur nanofiber tiga dimensi dengan kemurnian tinggi, kristalinitas yang

baik, serta sifat mekanik yang unggul dibandingkan selulosa dari tumbuhan (Gorgieva & Trček, 2019; Utoiu, *et al.*, 2024; Volova *et al.*, 2022). Selain itu, selulosa bakteri bersifat biodegradable dan biokompatibel, sehingga sejalan dengan prinsip pengembangan material berkelanjutan. Berbagai penelitian telah melaporkan potensi selulosa, termasuk selulosa bakteri dan nanofibril selulosa, sebagai penguat dalam matriks polimer dan elastomer (Kono, *et al.*, 2022; Lee *et al.*, 2012; Omran *et al.*, 2021).

Meskipun memiliki potensi yang besar, aplikasi selulosa bakteri sebagai *filler* dalam sistem karet masih menghadapi kendala utama, yaitu perbedaan polaritas antara selulosa bakteri yang bersifat hidrofilik dan matriks karet yang bersifat hidrofobik. Perbedaan ini menyebabkan interaksi antar fase yang kurang optimal, sehingga transfer tegangan dari matriks ke *filler* menjadi tidak efektif. Untuk mengatasi permasalahan tersebut, modifikasi permukaan selulosa bakteri diperlukan guna meningkatkan kompatibilitas dan interaksi dengan matriks elastomer (Alessandrini *et al.*, 2025; Hakimi *et al.*, 2021).

Penggunaan agen kopling silane merupakan salah satu pendekatan yang paling umum dan efektif untuk memodifikasi permukaan *filler* yang kaya gugus hidroksil. Agen kopling silane mampu membentuk ikatan kovalen dengan gugus –OH pada permukaan *filler* melalui pembentukan ikatan Si–O–C, sekaligus menyediakan gugus organik yang dapat berinteraksi dengan matriks polimer. Silane berbasis sulfur, seperti 3-mercaptopropyltrimethoxysilane (MPTMS) dan bis[3-(triethoxysilyl)propyl]polysulfide (Si69), sangat relevan dalam teknologi karet karena selain berfungsi sebagai agen kopling, juga berpotensi berkontribusi dalam proses vulkanisasi melalui gugus sulfur yang dimilikinya (You & Jin, 2024; Yu, *et al.*, 2020).

Dalam penelitian ini, *limonene dioxide* digunakan sebagai bahan pendukung dalam proses modifikasi permukaan selulosa bakteri. Senyawa epoksi berbasis terpena ini diperoleh dari limonene, yang merupakan sumber

terbarukan dari minyak atsiri kulit jeruk, dan dikenal sebagai monomer *biobased* dalam pengembangan material polimer berkelanjutan (Louisy, *et al.*, 2022). Gugus epoksi reaktif yang dimilikinya memungkinkan terjadinya interaksi kimia dengan gugus hidroksil selulosa maupun gugus fungsional lain yang terbentuk selama proses modifikasi, sehingga berpotensi mendukung pembentukan jaringan antarmuka yang lebih stabil dalam sistem berbasis selulosa (Clerget, *et al.*, 2024). Keberadaan kerangka hidrokarbon terpena pada limonene dioxide juga berkontribusi dalam memperkenalkan segmen organik nonpolar pada struktur permukaan selulosa bakteri, yang dapat membantu menurunkan sifat hidrofilisitasnya. Dengan demikian, penggunaan limonene dioxide dalam penelitian ini tidak berperan sebagai komponen utama, melainkan sebagai agen pendukung untuk meningkatkan efektivitas modifikasi permukaan dan kompatibilitas dengan matriks karet.

Sejauh ini, sebagian besar penelitian mengenai penggunaan silane, khususnya MPTMS dan Si69, difokuskan pada *filler* anorganik seperti silika atau serat alam lain, serta pada evaluasi performa mekanik kompon karet. Studi yang secara khusus menitikberatkan pada rekayasa permukaan selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane berbasis sulfur dan karakterisasi kimianya masih sangat terbatas. Selain itu, kajian komparatif antara silane dengan mekanisme ikatan sulfur yang berbeda, seperti MPTMS (gugus mercapto) dan Si69 (rantai polisulfida), terhadap fungsional permukaan selulosa bakteri belum banyak dilaporkan. Kesenjangan pengetahuan yang ada menunjukkan perlunya kajian mendalam terhadap aspek fundamental modifikasi kimia selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane. Pemahaman tersebut penting sebagai dasar ilmiah dalam pengembangan aplikasi lanjutan material ini pada sistem karet.

Berdasarkan latar belakang tersebut, penelitian ini bertujuan untuk merekayasa permukaan selulosa bakteri menggunakan dua

jenis agen kopling silane berbasis sulfur, yaitu MPTMS dan Si69 dengan penambahan limonene dioksida sebagai komponen pendukung berbasis bio. Evaluasi keberhasilan modifikasi dilakukan menggunakan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR) untuk mengidentifikasi pembentukan gugus fungsional baru dan *X-Ray Fluorescence* (XRF) untuk menganalisis komposisi unsur silikon dan sulfur. Hasil penelitian ini diharapkan dapat mengisi kesenjangan pengetahuan serta memberikan dasar ilmiah bagi pengembangan *bio-filler* berbasis selulosa bakteri untuk aplikasi karet.

Bahan dan Metode

Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi selulosa bakteri (Mitsuboshi Kogyo Co., Ltd), agen kopling silane MPTMS (grade komersial KBM 803, Shin-Etsu Chemical Co., Ltd) dan Si69 (grade komersial, Evonik Industries), limonene dioxide (hasil sintesis kulit jeruk), triethylamine (grade teknis, Merck), dan etanol (grade teknis, Merck). Alat yang digunakan terdiri dari gelas kimia, labu reaksi, oil bath, erlenmeyer, corong, mekanikal stirrer, kondensor, timbangan analitik, alat sentrigusi, dan *freeze dryer*.

Proses Modifikasi Selulosa Bakteri

Tabel 1 menyajikan formulasi modifikasi selulosa bakteri menggunakan dua jenis agen kopling silane berbasis sulfur, yaitu MPTMS dan Si69, dengan penambahan limonene dioxide sebagai komponen pendukung berbasis bio. Selulosa bakteri digunakan sebagai substrat utama dengan jumlah tetap sebesar 1 gram pada seluruh formulasi, sehingga pengaruh modifikasi dapat dikaitkan secara langsung dengan variasi jenis dan jumlah agen kopling silane yang digunakan.

Formulasi A hingga D menggunakan MPTMS dengan variasi konsentrasi bertingkat, masing-masing sebesar 1,22; 3,65; 7,30; dan 10,96 gram, sementara formulasi E hingga H menggunakan Si69 dengan jumlah

yang sama. Pendekatan ini memungkinkan kajian komparatif terhadap pengaruh jenis agen kopling silane serta tingkat penambahan silane terhadap karakteristik modifikasi kimia selulosa bakteri.

Limonene dioxide ditambahkan dalam jumlah tetap sebesar 1,04 gram pada seluruh formulasi untuk memastikan perannya sebagai komponen pendukung fungsionalisasi berbasis bio yang konsisten. Triethylamine digunakan sebagai katalis basa dengan jumlah yang sama pada setiap formulasi, sedangkan larutan HCl ditambahkan dalam jumlah kecil untuk menjaga kondisi pH (4) selama proses modifikasi. Etanol digunakan sebagai pelarut dengan volume yang konstan, sehingga kondisi reaksi tetap seragam pada seluruh sistem.

Melalui pengaturan formulasi ini, pengaruh variasi jenis dan konsentrasi agen kopling silane terhadap keberhasilan modifikasi kimia selulosa bakteri dapat dievaluasi secara sistematis melalui karakterisasi FTIR dan XRF.

Proses modifikasi selulosa bakteri dilakukan dengan terlebih dahulu mempersiapkan suspensi selulosa bakteri dengan cara menambahkan 1 gram selulosa bakteri ke dalam 20 gram air kemudian diaduk hingga membentuk suspensi. Suspensi yang sudah siap kemudian dimasukkan ke dalam labu reaksi yang terletak di dalam *oil bath*. Pelarut sebanyak 80 gram etanol juga ditambahkan ke dalam labu reaksi. Selanjutnya ditambahkan agen kopling silane MPTMS atau Si69 dengan berat yang

bervariasi yaitu 1,22; 3,65; 7,3; dan 10,96 gram. Kemudian derajat keasaman (pH) campuran disesuaikan menjadi 4 dengan menambahkan HCl 0,1 M. Triethylamine sebanyak 0,63 gram juga ditambahkan sebagai katalis basa. Semua campuran diaduk dengan menggunakan stirrer dan dipanaskan pada suhu 40°C selama 24 jam. Setelah proses modifikasi selesai, dilakukan proses pemisahan dan pencucian dengan air menggunakan alat sentrifugasi dengan kecepatan 60 rpm. Selanjutnya, campuran dikeringkan menggunakan metode *freeze drying* untuk mendapatkan selulosa termodifikasi yang kering.

Karakterisasi Selulosa Bakteri yang Termodifikasi

Selulosa bakteri termodifikasi dikarakterisasi dengan menggunakan Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) dan X-Ray Fluorescence (XRF). Analisis FTIR (Nicolat iS50 FT-IR, Tokyo, Jepang) dilakukan dengan metode pelet KBr pada rentang bilangan gelombang 4000 – 400 cm⁻¹, dengan resolusi 4 cm⁻¹ dan 32 kali pemindaian (*scans*) untuk setiap sampel. Metode ini digunakan untuk mengidentifikasi perubahan gugus fungsional serta pembentukan ikatan kimia baru akibat proses modifikasi permukaan selulosa bakteri.

Analisis XRF dilakukan menggunakan spektrometer XRF Rigaku ZSX Primus II (Tokyo, Jepang) yang dilengkapi perangkat lunak ZSX. Instrumen ini menggunakan tabung sinar-X dengan tegangan operasi 50 keV dan arus 50 mA, sehingga memungkinkan

Tabel 1. Formulasi modifikasi selulosa bakteri

Bahan	Formulasi (g)							
	A	B	C	D	E	F	G	H
Selulosa bakteri	1	1	1	1	1	1	1	1
MPTMS	1,22	3,65	7,3	10,96	0	0	0	0
Si69	0	0	0	0	1,22	3,65	7,3	10,96
Limonene dioxide	1,04	1,04	1,04	1,04	1,04	1,04	1,04	1,04
Triethylamine	0,63	0,63	0,63	0,63	0,63	0,63	0,63	0,63
HCl(untuk menjaga pH)	0,0036	0,0036	0,0036	0,0036	0,0036	0,0036	0,0036	0,0036
Etanol (pelarut)	80	80	80	80	80	80	80	80

deteksi berbagai unsur kimia pada sampel. Sebelum analisis, sampel berbentuk serbuk dikompresi menjadi pelet menggunakan tekanan 500 kgf/cm^2 untuk memperoleh permukaan yang homogen dan representatif selama pengukuran.

Hasil dan Pembahasan

Mekanisme Reaksi Modifikasi Selulosa Bakteri Berbasis Silane

Mekanisme modifikasi selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane diawali oleh proses hidrolisis gugus alkoksilana yang terdapat pada struktur MPTMS maupun Si69. Dalam medium etanol-air dengan kondisi pH asam ringan (sekitar pH 4), gugus metoksi atau etoksi pada silane terhidrolisis membentuk gugus silanol ($-\text{Si}-\text{OH}$). Tahap ini merupakan mekanisme umum dalam proses silanisasi permukaan material yang kaya gugus hidroksil dan telah banyak dilaporkan pada modifikasi selulosa dan serat alam lainnya (Brochier Salon, *et al.*, 2005; Thakur, *et al.*, 2014).

Silanol yang terbentuk selanjutnya mengalami reaksi kondensasi dengan gugus $-\text{OH}$ pada rantai selulosa bakteri, menghasilkan ikatan kovalen $\text{Si}-\text{O}-\text{C}$. Pembentukan ikatan ini menandakan keberhasilan fungsionalisasi permukaan selulosa bakteri secara kimia, yang ditunjukkan secara tidak langsung oleh munculnya puncak karakteristik $\text{Si}-\text{O}-\text{C}$ dan $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ pada spektrum FTIR. Selain reaksi dengan selulosa, sebagian silanol juga dapat mengalami kondensasi antarmolekul silane membentuk ikatan $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$, sehingga menghasilkan lapisan silane yang terikat pada permukaan selulosa. Mekanisme ini sejalan dengan hasil penelitian sebelumnya yang melaporkan perubahan gugus fungsional selulosa setelah modifikasi silane yang terdeteksi melalui analisis FTIR (Bessa *et al.*, 2021; Gao *et al.*, 2012).

Pada sistem yang menggunakan MPTMS, gugus mercapto ($-\text{SH}$) tetap terintegrasi pada struktur silane setelah proses kondensasi dan tidak berperan aktif selama tahap modifikasi selulosa. Gugus ini bersifat laten (artinya ada

tetapi belum berperan pada tahap ini) dan berpotensi berperan pada aplikasi lanjutan, khususnya ketika material digunakan dalam sistem karet yang melibatkan reaksi vulkanisasi berbasis sulfur. Fenomena serupa telah banyak dilaporkan pada penggunaan agen kopling silane berbasis sulfur untuk aplikasi *adhesive* (Gadhawe, *et al.*, 2021).

Penambahan limonene dioxide berperan sebagai komponen pendukung fungsionalisasi berbasis bio. Limonene dioxide merupakan senyawa epoksi turunan limonene yang memiliki gugus epoksi reaktif serta kerangka hidrokarbon terpene yang relatif nonpolar. Gugus epoksi limonene dioxide berpotensi berinteraksi dengan gugus hidroksil selulosa bakteri maupun gugus silanol residual melalui mekanisme pembukaan cincin epoksi, meskipun reaksi ini tidak selalu menghasilkan ikatan kovalen penuh (Louisy *et al.*, 2022). Kehadiran limonene dioxide berkontribusi dalam memperkaya fungsionalisasi permukaan selulosa bakteri serta membantu menyeimbangkan karakter polar-nonpolar dari material hasil modifikasi.

Triethylamine digunakan dalam sistem reaksi sebagai katalis basa yang berperan secara lokal. Meskipun pH sistem secara keseluruhan dijaga pada kondisi asam ringan menggunakan HCl untuk mengoptimalkan hidrolisis silane, triethylamine berfungsi sebagai *proton scavenger* yang memfasilitasi reaksi kondensasi silanol serta pembukaan cincin epoksi limonene dioxide pada tingkat mikro lingkungan reaksi (Du *et al.*, 2023). Dengan demikian, triethylamine tidak bertujuan untuk mengubah pH *bulk* sistem dan tidak menjadi bagian dari struktur kimia akhir selulosa bakteri termodifikasi. Penggunaan HCl dan triethylamine secara bersamaan tidak bersifat kontradiktif, karena masing-masing memiliki fungsi yang berbeda, yaitu pengaturan lingkungan reaksi secara makroskopik dan percepatan reaksi secara kinetik pada tingkat lokal.

Skema reaksi pada Gambar 1 dan 2 menggambarkan tahapan modifikasi selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane MPTMS dan Si69. Struktur selulosa bakteri

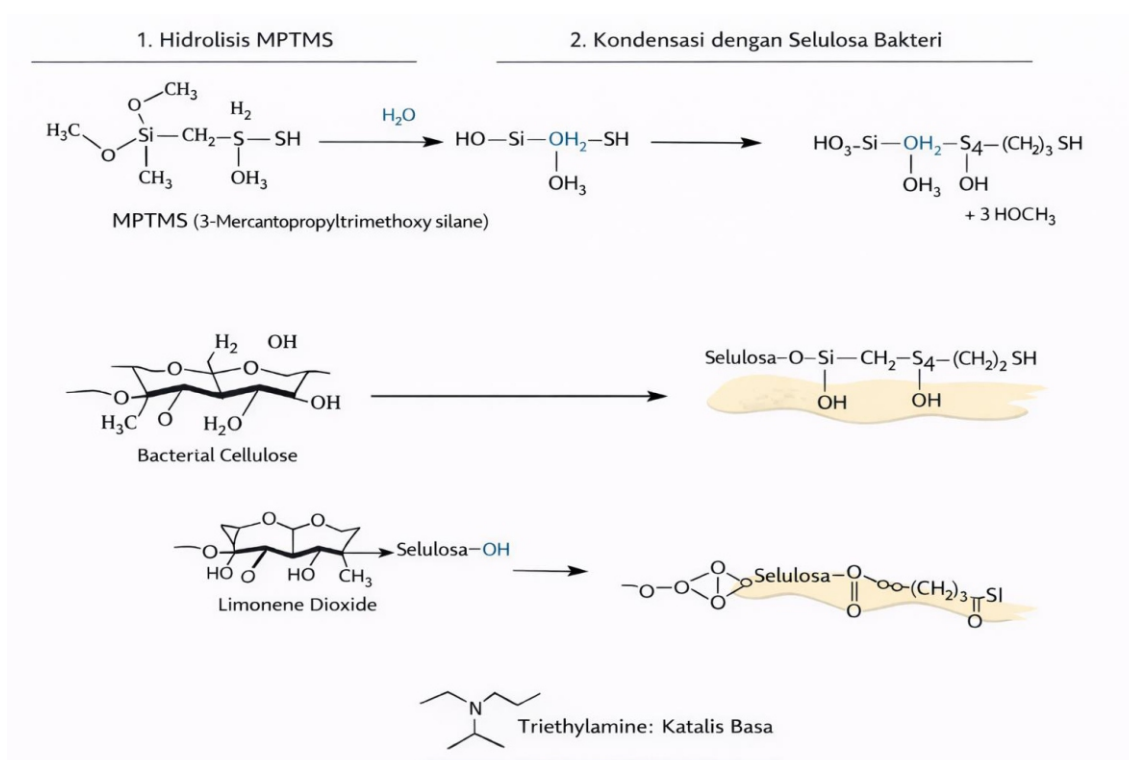
direpresentasikan oleh unit anhidroglukosa yang mengandung gugus hidroksil reaktif. Agen kopling silane (MPTMS atau Si69) terlebih dahulu mengalami hidrolisis gugus alkoksisilana menjadi silanol, yang kemudian bereaksi dengan gugus hidroksil selulosa membentuk ikatan Si–O–C. Pada sistem Si69, struktur silane yang mengandung dua gugus silana yang dihubungkan oleh rantai polisulfida memungkinkan terbentuknya jaringan antarmuka yang lebih kompleks pada permukaan selulosa bakteri.

Limonene dioxide ditunjukkan sebagai komponen pendukung yang berinteraksi dengan permukaan selulosa dan silane melalui gugus epoksi, sedangkan triethylamine ditampilkan sebagai katalis yang memfasilitasi reaksi tanpa terikat secara kovalen. Skema ini menegaskan bahwa modifikasi yang terjadi bersifat fungsionalisasi permukaan, dengan

gugus sulfur tetap berada sebagai bagian laten yang berpotensi berperan pada aplikasi lanjutan dalam sistem karet.

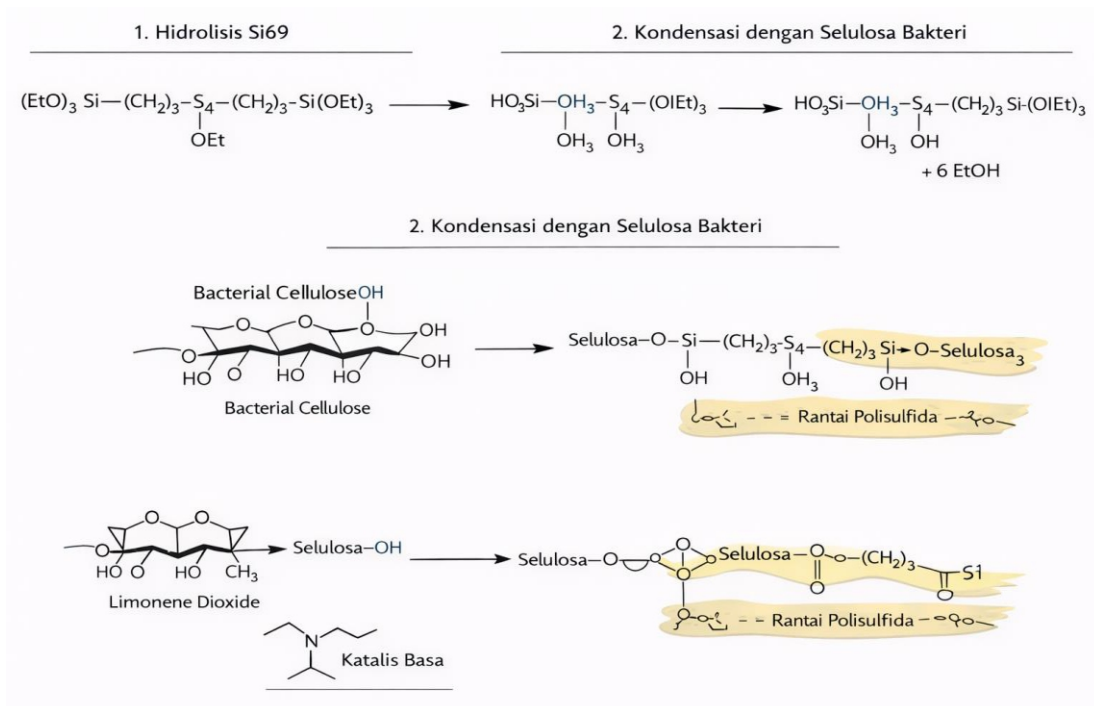
Analisis FTIR Selulosa Bakteri Termodifikasi dengan MPTMS

Gambar 3 menyajikan spektra FTIR dari selulosa bakteri yang telah dimodifikasi menggunakan berbagai formulasi agen kopling silane MPTMS, serta spektra masing-masing material penyusunnya sebagai pembanding. Penyajian spektra ini bertujuan untuk mengevaluasi perubahan gugus fungsional pada selulosa bakteri setelah proses modifikasi, serta mengidentifikasi pembentukan ikatan kimia baru yang berkaitan dengan interaksi antara selulosa bakteri, agen kopling silane dan komponen pendukung berbasis bio.

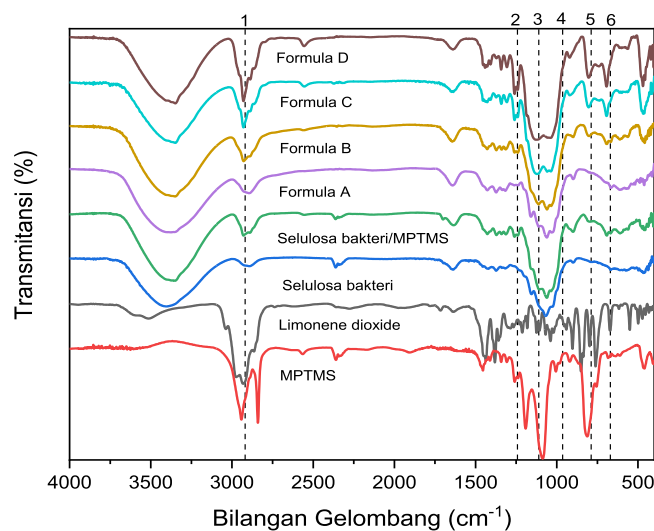


Gambar 1. Skema reaksi modifikasi selulosa bakteri dengan agen kopling silane MPTMS

Modifikasi selulosa bakteri berbasis agen kopling silane MPTMS dan Si69 sebagai bio-filler fungsional (studi FTIR dan XRF)



Gambar 2. Skema reaksi modifikasi selulosa bakteri dengan agen kopling silane Si69



Gambar 3. FTIR spectra Formula A-D (agen kopling silane MPTMS) dan spectra untuk selulosa bakteri serta masing-masing reaktan

Spektrum FTIR selulosa bakteri murni menunjukkan puncak serapan khas selulosa, yaitu puncak regangan gugus hidroksil (-OH) yang lebar pada kisaran $3300\text{--}3400\text{ cm}^{-1}$ serta puncak regangan C-H alifatik di sekitar 2900 cm^{-1} . Puncak-puncak ini mencerminkan sifat hidrofilik selulosa bakteri yang kaya gugus hidroksil pada permukaannya. Karakteristik spektrum ini sejalan dengan laporan sebelumnya mengenai struktur kimia selulosa bakteri dan nanofibril selulosa (Almihiyawi, *et al.*, 2024; Bektas & Yildirim, 2025; Z. Li *et al.*, 2016). Selain itu, spektrum limonene dioxide memperlihatkan puncak khas senyawa epoksi dan gugus C-H alifatik, sebagaimana dilaporkan pada FTIR dalam studi tentang fotopolimerisasi limonene dioxide (Clerget *et al.*, 2024). Selain itu, FTIR agen kopling MPTMS menunjukkan puncak-puncak yang berkaitan dengan gugus alkoksilana dan struktur organosilan, seperti dilaporkan pada penelitian sebelumnya (Y.-S. Li, *et al.*, 2005).

Setelah proses modifikasi menggunakan agen kopling silan MPTMS dan penambahan limonene dioxide (Formula A-D), terjadi perubahan yang jelas pada spektrum FTIR selulosa bakteri, sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 3. Munculnya puncak serapan baru pada bilangan gelombang sekitar 1242 cm^{-1} dikaitkan dengan pembentukan ikatan Si-O-C , yang mengindikasikan terjadinya reaksi kondensasi antara gugus silanol hasil hidrolisis MPTMS dengan gugus hidroksil selulosa bakteri. Mekanisme ini merupakan ciri khas proses silanisasi permukaan material yang kaya gugus -OH dan telah banyak dilaporkan pada modifikasi selulosa dan serat alam (Dhali, *et al.*, 2022; Neves, *et al.*, 2020; Thakur *et al.*, 2014).

Selain itu, puncak pada sekitar 1111 cm^{-1} dikaitkan dengan ikatan Si-O-Si , yang menunjukkan terjadinya kondensasi antarmolekul silane dan pembentukan jaringan siloksan pada permukaan selulosa. Puncak tambahan pada sekitar 964 cm^{-1} juga menguatkan keberadaan ikatan Si-O-C , sedangkan puncak pada kisaran 788 cm^{-1} dan 670 cm^{-1} masing-masing dikaitkan dengan

regangan Si-C dan regangan simetris Si-O-Si . Gugus-gugus fungsional ini umum dilaporkan pada sistem selulosa termodifikasi silane dan sering digunakan sebagai indikator keberhasilan reaksi silanisasi melalui analisis FTIR (Neves *et al.*, 2020; Tan *et al.*, 2023).

Keberadaan puncak-puncak tersebut, sebagaimana dirangkum pada Tabel 2, menegaskan bahwa proses silanisasi menggunakan MPTMS berhasil memfungsionalisasi permukaan selulosa bakteri. Intensitas puncak-puncak yang berkaitan dengan gugus silane cenderung meningkat seiring dengan peningkatan jumlah MPTMS dalam formulasi, yang menunjukkan derajat modifikasi permukaan yang lebih tinggi.

Perbandingan spektra FTIR antar formulasi A-D menunjukkan bahwa peningkatan jumlah MPTMS menghasilkan peningkatan intensitas pita serapan yang berkaitan dengan gugus silane, khususnya pada daerah 1242 cm^{-1} (Si-O-C) dan 1111 cm^{-1} (Si-O-Si). Peningkatan ini menunjukkan bahwa proses silanisasi berlangsung lebih efektif seiring bertambahnya jumlah agen kopling. Namun demikian, pada konsentrasi silane yang terlalu tinggi seperti pada Formula C dan D, peningkatan intensitas pita Si-O-Si relatif lebih dominan dibandingkan pita Si-O-C , yang mengindikasikan kemungkinan terjadinya kondensasi antarsilane yang berlebihan dan pembentukan jaringan siloksan yang tidak seluruhnya terikat pada permukaan selulosa. Sebaliknya, Formula B menunjukkan kemunculan pita Si-O-C yang jelas dengan intensitas yang cukup kuat tanpa indikasi pembentukan jaringan siloksan berlebih. Hal ini menunjukkan bahwa proses fungsionalisasi permukaan berlangsung secara lebih efektif dan terkendali. Oleh karena itu, berdasarkan interpretasi spektra FTIR yang didukung oleh analisis komposisi unsur melalui XRF, Formula B dipertimbangkan sebagai formulasi yang paling representatif untuk menghasilkan modifikasi selulosa bakteri yang optimal pada sistem MPTMS.

Tabel 2. Gugus fungsional penting dalam reaksi modifikasi selulosa bakteri dengan agen kopling silane MPTMS dan limonene dioxide

No.	Wavenumber (cm ⁻¹)	Assignment
1	2919	-CH str vib
2	1242	Si-O-C
3	1111	Si-O-Si
4	964	Si-O-C
5	788	Si-C str
6	670	Si-O-Si sym str

Analisis FTIR Selulosa Bakteri Termodifikasi dengan Si69

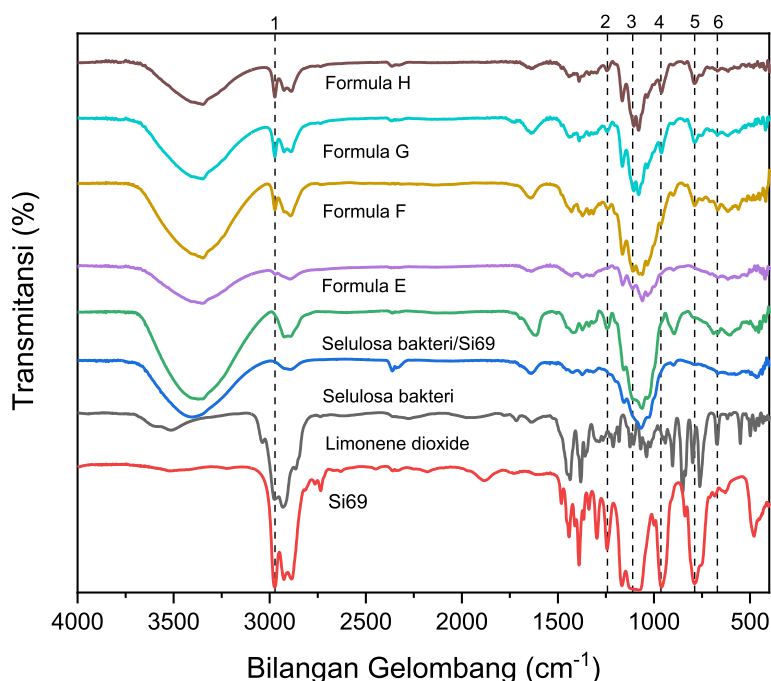
Spektrum FTIR selulosa bakteri termodifikasi menggunakan agen kopling silan Si69 (Formula E–H) menunjukkan pola perubahan yang serupa dengan sistem MPTMS, sebagaimana ditampilkan pada Gambar 4. Puncak khas selulosa pada sekitar 3300–3400 cm⁻¹ dan 2900 cm⁻¹ masih teramati, yang menunjukkan bahwa struktur dasar selulosa bakteri tetap terjaga setelah proses modifikasi. Fenomena ini umum ditemukan pada modifikasi permukaan selulosa, di mana reaksi terutama terjadi pada gugus hidroksil permukaan tanpa merusak struktur rantai utama selulosa (Neves *et al.*, 2020; Perera, *et al.*, 2022; Thakur *et al.*, 2014).

Munculnya puncak pada bilangan gelombang sekitar 1242 cm⁻¹ dan 964 cm⁻¹ menunjukkan terbentuknya ikatan Si–O–C antara silane Si69 dan gugus hidroksil selulosa bakteri. Puncak pada sekitar 1111 cm⁻¹ yang dikaitkan dengan ikatan Si–O–Si menunjukkan terjadinya kondensasi antarsilane, yang berpotensi menghasilkan lapisan silane yang lebih kompleks pada permukaan selulosa. Keberadaan puncak pada kisaran 788 cm⁻¹ dan 670 cm⁻¹ juga mengindikasikan keberadaan gugus Si–C dan struktur siloksan dalam sistem termodifikasi, sebagaimana dirangkum dalam Tabel 3. Temuan ini konsisten dengan laporan mengenai penggunaan Si69 sebagai agen

kopling pada *filler* berbasis silika dan selulosa dalam system elastomer (Tian, *et al.*, 2018; You & Jin, 2024).

Perbedaan penting antara sistem MPTMS dan Si69 terletak pada karakteristik struktur silananya. Si69 memiliki dua gugus silana yang dihubungkan oleh rantai polisulfida, sehingga berpotensi menghasilkan struktur antarmuka yang lebih kompleks pada permukaan selulosa bakteri. Hal ini tercermin dari variasi intensitas puncak-puncak yang berkaitan dengan gugus silane dan sulfur pada spektrum FTIR Formula E–H, yang cenderung meningkat dengan bertambahnya kandungan Si69 dalam formulasi.

Limonene dioxide berperan sebagai komponen pendukung fungsionalisasi berbasis bio dalam kedua sistem modifikasi. Gugus epoksi pada limonene dioxide bersifat reaktif dan berpotensi berinteraksi dengan gugus hidroksil selulosa maupun gugus silanol residual melalui mekanisme pembukaan cincin epoksi. Meskipun kontribusi ikatan kovalen langsung sulit dibedakan secara spesifik melalui FTIR, keberadaan limonene dioxide diyakini berkontribusi terhadap pengayaan gugus organik pada permukaan selulosa bakteri serta membantu menurunkan sifat hidrofilik material. Peran senyawa epoksi berbasis terpene dalam modifikasi material polimer dan selulosa telah dilaporkan dalam berbagai studi sebelumnya (Louisy *et al.*, 2022).



Gambar 3. FTIR spectra Formula E - H (agen kopling silane Si69) dan spectra untuk selulosa bakteri serta masing-masing reaktan

Tabel 3. Gugus fungsional penting dalam reaksi modifikasi selulosa bakteri dengan agen kopling silane Si69 dan limonene dioxide

No.	Wavenumber (cm ⁻¹)	Assignment
1	2919	-CH str vib
2	1242	Si-O-C
3	1111	Si-O-Si
4	964	Si-O-C
5	788	Si-C str
6	670	Si-O-Si sym str

Analisis komparatif spektra FTIR pada Formula E-H menunjukkan bahwa peningkatan jumlah Si69 menyebabkan intensitas pita yang berkaitan dengan gugus silane semakin meningkat, khususnya pada daerah 1242 cm⁻¹ (Si-O-C) dan 1111 cm⁻¹ (Si-O-Si). Pada Formula E dan F, intensitas pita tersebut masih relatif rendah yang menunjukkan bahwa proses silanisasi belum

berlangsung secara optimal. Pada Formula G, pita Si-O-C dan Si-O-Si muncul dengan intensitas yang jelas, menandakan terbentuknya ikatan antara silane dan gugus hidroksil selulosa secara efektif. Sementara itu, pada Formula H peningkatan intensitas pita Si-O-Si menjadi lebih dominan, yang mengindikasikan kemungkinan terbentuknya kondensasi antarsilane secara berlebihan.

Kondisi ini dapat menyebabkan terbentuknya struktur siloksan yang tidak seluruhnya terikat pada permukaan selulosa. Oleh karena itu, berdasarkan interpretasi spektra FTIR yang menunjukkan keseimbangan pembentukan ikatan Si-O-C dan Si-O-Si, serta didukung oleh hasil analisis XRF, Formula G dipertimbangkan sebagai formulasi yang paling optimal untuk sistem modifikasi menggunakan Si69.

Analisis XRF Selulosa Bakteri Termodifikasi dengan MPTMS

Untuk mengonfirmasi keberhasilan modifikasi kimia selulosa bakteri melalui pendekatan silanisasi, dilakukan analisis komposisi unsur menggunakan XRF. Teknik ini digunakan untuk mengidentifikasi perubahan komposisi unsur pada selulosa bakteri setelah modifikasi, khususnya terkait keberadaan unsur silikon (Si) dan sulfur (S) yang berasal dari agen kopling silane dan komponen pendukung berbasis bio. Tabel 4 menyajikan hasil analisis XRF dari selulosa bakteri yang dimodifikasi menggunakan agen kopling silane MPTMS dengan penambahan limonene dioxide.

Hasil analisis XRF pada selulosa bakteri murni menunjukkan bahwa material ini didominasi oleh unsur karbon (C) dan oksigen (O), masing-masing sebesar 40,5% dan 56,7%, yang mencerminkan struktur polisakarida selulosa yang tersusun dari unit anhidroglukosa. Tidak terdeteksinya unsur silikon (Si) dan sulfur (S) pada selulosa bakteri murni menegaskan bahwa unsur-unsur tersebut bukan merupakan komponen intrinsik dari struktur selulosa.

Setelah modifikasi menggunakan agen kopling silane MPTMS, terdeteksi keberadaan unsur silikon dan sulfur pada selulosa bakteri/MPTMS, masing-masing sebesar 9,78% dan 10,6% (Tabel 4). Munculnya kedua unsur ini mengonfirmasi keberhasilan proses silanisasi, karena MPTMS mengandung gugus alkoksilana sebagai sumber unsur silikon (Si) serta gugus mercapto (-SH) sebagai sumber unsur sulfur (S). Peningkatan kandungan Si dan S pada selulosa bakteri yang termodifikasi

merupakan indikator umum terjadinya ikatan kimia antara silane dan gugus hidroksil pada permukaan selulosa, sebagaimana telah dilaporkan pada berbagai studi modifikasi permukaan berbasis silane kopling agen (Pan *et al.*, 2020; Xie, *et al.*, 2010).

Pada Formula A – D, yang merepresentasikan variasi jumlah MPTMS dengan penambahan limonene dioxide, kandungan silikon dan sulfur menunjukkan tren peningkatan seiring bertambahnya jumlah agen kopling. Formula A menunjukkan kandungan Si dan S yang paling rendah, masing-masing sebesar 2,18% dan 2,17%, sedangkan Formula C menunjukkan kandungan tertinggi, yaitu 15,7% Si dan 16,1% S. Peningkatan ini mengindikasikan derajat fungsionalisasi permukaan selulosa bakteri yang semakin tinggi akibat bertambahnya jumlah silane yang terikat.

Perubahan kandungan unsur karbon dan oksigen pada selulosa bakteri termodifikasi juga dapat diamati. Penurunan relatif kandungan oksigen dan karbon dibandingkan selulosa bakteri murni menunjukkan bahwa permukaan selulosa telah tertutupi oleh lapisan silane dan komponen organik lainnya, sehingga komposisi unsur permukaan berubah. Hal ini konsisten dengan laporan sebelumnya bahwa modifikasi permukaan selulosa dengan agen kopling silane menghasilkan adisi gugus silane yang bereaksi dengan -OH selulosa, sehingga menutup sebagian area permukaan asli dan mengubah profil kimia permukaan material (Gadhawe *et al.*, 2021; Thakur *et al.*, 2014).

Penentuan formulasi optimum pada sistem MPTMS didasarkan pada keseimbangan antara derajat fungsionalisasi permukaan selulosa bakteri dan efisiensi reaksi silanisasi, yang tercermin dari kandungan unsur silikon dan sulfur hasil analisis XRF. Formula A menunjukkan kandungan Si dan S yang relatif rendah, menandakan bahwa proses silanisasi belum berlangsung secara efektif. Peningkatan signifikan kandungan Si dan S mulai teramati pada Formula B, yang mengindikasikan terbentuknya ikatan kimia antara gugus

Tabel 4. Hasil analisis XRF dari modifikasi selulosa dengan agen kopling MPTMS dan limonene dioxide

Unsur	Selulosa bakteri	Selulosa bakteri/MPTMS	Formula A	Formula B	Formula C	Formula D
C	40,5	32,1	39,3	32,9	29,3	32,2
O	56,7	47,4	55,4	48,2	38,7	44,8
Si	-	9,78	2,18	8,83	15,7	11,5
S	-	10,6	2,17	9,18	16,1	11,2

alkoksisilana MPTMS dan gugus hidroksil selulosa bakteri secara lebih optimal. Formula C memperlihatkan kandungan Si dan S tertinggi, yang mencerminkan derajat fungsionalisasi maksimum, namun kondisi ini berpotensi berkaitan dengan terjadinya kondensasi silane berlebih atau pembentukan struktur siloksan antarmolekul yang tidak seluruhnya terikat pada permukaan selulosa. Pada Formula D, kandungan Si dan S mengalami penurunan dibandingkan Formula C, yang mengindikasikan kemungkinan kejenuhan permukaan atau keterbatasan situs reaktif. Berdasarkan pertimbangan tersebut, Formula B ditetapkan sebagai formulasi optimum untuk sistem MPTMS karena menunjukkan fungsionalisasi yang efektif dengan penggunaan agen kopling yang lebih efisien.

Analisis XRF Selulosa Bakteri Termodifikasi dengan Si69

Hasil analisis XRF pada sistem selulosa bakteri termodifikasi menggunakan agen kopling Si69 menunjukkan tren yang berbeda dibandingkan sistem MPTMS (Tabel 5). Selulosa bakteri/Si69 menunjukkan keberadaan unsur silikon dan sulfur masing-masing sebesar 0,59% dan 0,47%, yang mengindikasikan bahwa Si69 telah terikat pada permukaan selulosa, meskipun pada tingkat yang relatif rendah pada kondisi awal.

Pada Formula E–H, kandungan silikon dan sulfur meningkat secara bertahap seiring dengan peningkatan jumlah Si69 dalam

formulasi. Kandungan silikon meningkat dari 0,92% (Formula E) hingga 8,30% (Formula H), sedangkan kandungan sulfur meningkat secara signifikan dari 1,56% menjadi 18,6%. Peningkatan sulfur yang lebih tajam dibandingkan silikon berkaitan erat dengan struktur kimia Si69 yang mengandung rantai polisulfida, sehingga setiap molekul Si69 berkontribusi terhadap kandungan sulfur yang relatif lebih tinggi dibandingkan MPTMS.

Perbedaan rasio Si dan S antara sistem MPTMS dan Si69 mencerminkan perbedaan mekanisme dan struktur agen kopling yang digunakan. Pada MPTMS, sulfur hadir dalam bentuk gugus mercapto tunggal, sedangkan pada Si69, sulfur hadir dalam bentuk rantai polisulfida yang lebih panjang dan aktif. Hal ini menjelaskan mengapa sistem Si69 menunjukkan peningkatan kandungan sulfur yang lebih signifikan, terutama pada Formula G dan H.

Seperti pada sistem MPTMS, perubahan kandungan unsur karbon dan oksigen pada selulosa bakteri termodifikasi Si69 menunjukkan bahwa permukaan selulosa telah mengalami fungsionalisasi. Penurunan kandungan oksigen pada Formula G dan H mengindikasikan berkurangnya sifat hidrofilik permukaan akibat keberadaan gugus organosilane dan segmen hidrokarbon dari silane, yang berpotensi meningkatkan kompatibilitas dengan matriks karet yang bersifat hidrofobik.

Menurut penelitian sebelumnya (Han *et al.*, 2020; Wang, *et al.*, 2020; You & Jin, 2024),

Tabel 5. Hasil analisis XRF dari modifikasi selulosa dengan agen kopling Si69 dan limonene dioxide.

Unsur	Selulosa bakteri	Selulosa bakteri/Si69	Formula E	Formula F	Formula G	Formula H
C	40,5	41,7	41,4	36,8	33,5	31,5
O	56,7	57,0	55,2	52,6	45,2	41,1
Si	-	0,59	0,92	3,16	6,38	8,30
S	-	0,47	1,56	6,62	14,2	18,6

gugus sulfur yang terikat pada silane polisulfida seperti Si69 memiliki potensi untuk berinteraksi dengan matriks elastomer pada tahap aplikasi lanjutan, misalnya dalam sistem karet tervulkanisasi. Oleh karena itu, hasil karakterisasi kimia ini dapat dipandang sebagai dasar konseptual untuk pengembangan selulosa bakteri termodifikasi sebagai *bio-filler* fungsional pada aplikasi karet di masa mendatang.

Pada sistem modifikasi menggunakan Si69, Formula E menunjukkan tingkat fungsionalisasi yang masih terbatas, ditandai oleh rendahnya kandungan silikon dan sulfur. Formula F memperlihatkan peningkatan kandungan kedua unsur tersebut, yang mengindikasikan mulai berlangsungnya reaksi silanisasi secara lebih efektif. Formula G menunjukkan keseimbangan paling ideal antara kandungan silikon dan sulfur, yang mencerminkan keberhasilan fungsionalisasi permukaan selulosa bakteri tanpa indikasi reaksi berlebih. Sebaliknya, Formula H menghasilkan kandungan Si dan S tertinggi, namun kondisi ini berpotensi berkaitan dengan kelebihan silane atau pembentukan struktur polisulfida yang tidak terikat secara optimal pada permukaan selulosa. Oleh karena itu, Formula G ditetapkan sebagai formulasi optimum untuk sistem Si69 karena memberikan derajat fungsionalisasi yang efektif dan terkendali.

Kesimpulan

Penelitian ini berhasil merekayasa permukaan selulosa bakteri menggunakan agen kopling silane berbasis sulfur, yaitu 3-mercaptopropyltrimethoxysilane (MPTMS) dan bis[3-(triethoxysilyl)propyl] polysulfide (Si69), dengan penambahan limonene dioxide sebagai komponen pendukung berbasis bio. Proses silanisasi berlangsung melalui mekanisme hidrolisis dan kondensasi, yang menghasilkan pembentukan ikatan kovalen Si-O-C dan jaringan Si-O-Si pada permukaan selulosa bakteri.

Keberhasilan modifikasi dikonfirmasi melalui analisis FTIR yang menunjukkan munculnya pita serapan khas silane serta perubahan karakteristik gugus hidroksil. Selain itu, analisis XRF mengungkap peningkatan kandungan unsur silikon dan sulfur pada selulosa bakteri termodifikasi. Perbedaan komposisi unsur dan karakteristik spektra antara sistem MPTMS dan Si69 mencerminkan pengaruh struktur kimia masing-masing agen kopling terhadap derajat fungsionalisasi permukaan.

Berdasarkan hasil FTIR dan XRF, Formula B ditetapkan sebagai formulasi optimum untuk sistem MPTMS, sedangkan Formula G merupakan formulasi optimum untuk sistem Si69. Secara keseluruhan, penelitian ini memberikan dasar konseptual dan eksperimental bagi pengembangan selulosa bakteri termodifikasi silane sebagai bio-filler fungsional berbasis material terbarukan, serta membuka peluang untuk studi lanjutan terkait evaluasi performa dalam sistem karet dan sifat mekanik material hasil modifikasi.

Daftar Pustaka

- Alessandrini, F., Guerra, S., Tadiello, L., Giannini, L., Branduardi, P., & Serra, I. (2025). Enzymemediated tuning of cellulose surface reactivity for innovative compounding purposes. *Cellulose*, 32(17), 9967-9983. doi:10.1007/s10570-025-06783-6.
- Almihiyawi, R. A. H., Musazade, E., Alhussany, N., Zhang, S., & Chen, H. (2024). Production and characterization of bacterial cellulose by *Rhizobium* sp. isolated from bean root. *Scientific Reports*, 14(1), 10848. doi:10.1038/s41598-024-61619-w.
- Bektas, I., & Yildirim, N. B. (2025). Molecular characterization of bacterial cellulose producing bacillus strains isolated from soil. *J Basic Microbiol*, 65(6), e70026. doi:10.1002/jobm.70026.
- Bessa, W., Trache, D., Derradji, M., Bentoumia, B., Tarchoun, A. F., & Hemmouche, L. (2021). Effect of silane modified microcrystalline cellulose on the curing kinetics, thermo-mechanical properties and thermal degradation of benzoxazine resin. *Int J Biol Macromol*, 180, 194 - 202. doi:10.1016/j.ijbiomac.2021.03.080.
- Brochier Salon, M.-C., Abdelmouleh, M., Boufi, S., Belgacem, M. N., & Gandini, A. (2005). Silane adsorption onto cellulose fibers: Hydrolysis and condensation reactions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 289(1), 249 - 261. doi:https://doi.org/10.1016/j.jcis.2005.03.070.
- Chang, B. P., Gupta, A., Muthuraj, R., & Mekonnen, T. H. (2021). Bioresourced fillers for rubber composite sustainability: current development and future opportunities. *Green Chemistry*, 23(15), 5337-5378. doi:10.1039/D1GC01115D.
- Cifriadi, A., & Kinasih, N. A. (2014). Perkembangan industri nano filler untuk industri karet di indonesia. *Warta Perkaretan*, 33(2), 113 - 120. doi:10.22302/ppk.wp.v33i2.56.
- Clerget, M., Gagnon, E., & Claverie, J. P. (2024). Photopolymerization of limonene dioxide and vegetable oils as biobased 3d-printing stereolithographic formulation. *Polymers (Basel)*, 16(7). doi:10.3390/polym16070965.
- Dhali, K., Daver, F., Cass, P., & Adhikari, B. (2022). Surface modification of the cellulose nanocrystals through vinyl silane grafting. *Int J Biol Macromol*, 200, 397-408. doi:10.1016/j.ijbiomac.2022.01.079.
- Du, Y., Xue, X., Jiang, Q., Huang, W., Yang, H., Jiang, L., Jiang, B., Komarneni, S. (2023). Ring-opening mechanism of epoxides with alcohol and tertiary amines. *Polymer Chemistry*, 14(32), 3679-3685. doi:10.1039/D3PY00481C.
- Gadhawe, R. V., Dhawale, P. V., & Sorate, C. S. (2021). Surface modification of cellulose with silanes for adhesive application: Review. *Open Journal of Polymer Chemistry* 11(2), 11 - 30. doi:https://doi.org/10.4236/ojchem.2021.112002.
- Gao, T. M., Huang, M. F., Li, P. W., Han, Z. P., Xie, R. H., & Chen, H. L. (2012). Preparation and characterization nanocellulose and its surface modification by silane coupling agent. *Applied Mechanics and Materials*, 217-219, 260-263. doi:10.4028/www.scientific.net/AMM.217-219.260.
- Gorgieva, S., & Tr ek, J. (2019). Bacterial cellulose: production, modification and perspectives in biomedical applications. *Nanomaterials (Basel)*, 9(10). doi:10.3390/nano9101352.
- Hakimi, N. M. F., Lee, S. H., Lum, W. C., Mohamad, S. F., Osman Al Edrus, S. S., Park, B.-D., & Azmi, A. (2021). Surface modified nanocellulose and its reinforcement in natural rubber matrix nanocomposites: a review. *Polymers*, 13(19), 3241. Retrieved from https://www.mdpi.com/2073-4360/13/19/3241.

- Han, S., Gu, B., Kim, S., Kim, S., Mun, D., Morita, K., Kim, D., Kim, W. (2020). Effect of sulfur variation on the vulcanizate structure of silica-filled styrene-butadiene rubber compounds with a sulfide-silane coupling agent. *Polymers (Basel)*, 12(12). doi:10.3390/polym12122815.
- Kono, H., Tsujisaki, H., & Tajima, K. (2022). Reinforcing poly(methyl methacrylate) with bacterial cellulose nanofibers chemically modified with methacryloyl groups. *Nanomaterials (Basel)*, 12(3). doi:10.3390/nano12030537.
- Lee, K. Y., Tammelin, T., Schultze, K., Kiiskinen, H., Samela, J., & Bismarck, A. (2012). High performance cellulose nanocomposites: comparing the reinforcing ability of bacterial cellulose and nanofibrillated cellulose. *ACS Appl Mater Interfaces*, 4(8), 4078-4086. doi:10.1021/am300852a.
- Li, Y.-S., Wang, Y., Tran, T., & Perkins, A. (2005). Vibrational spectroscopic studies of (3-mercaptopropyl)trimethoxysilane sol-gel and its coating. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 61(13), 3032-3037. doi:https://doi.org/10.1016/j.saa.2004.11.031.
- Li, Z., Lv, X., Chen, S., Wang, B., Feng, C., Xu, Y., & Wang, H. (2016). Improved cell infiltration and vascularization of three-dimensional bacterial cellulose nanofibrous scaffolds by template biosynthesis. *RSC Advances*, 6(48), 42229-42239. doi:10.1039/C6RA07685H.
- Louisy, E., Khodyrieva, V., Olivero, S., Michelet, V., & Mija, A. (2022). Use of limonene epoxides and derivatives as promising monomers for biobased polymers. *Chempluschem*, 87(8), e202200190. doi:10.1002/cplu.202200190.
- Neves, R. M., Ornaghi, H. L., Jr., Zattera, A. J., & Amico, S. C. (2020). The influence of silane surface modification on microcrystalline cellulose characteristics. *Carbohydr Polym*, 230, 115595. doi:10.1016/j.carbpol.2019.115595.
- Omran, A. A. B., Mohammed, A., Sapuan, S. M., Ilyas, R. A., Asyraf, M. R. M., Rahimian Koloor, S. S., & Petr, M. (2021). Micro- and nanocellulose in polymer composite materials: a review. *Polymers (Basel)*, 13(2). doi:10.3390/polym13020231.
- Pan, Y., Zhang, M., Zhang, J., Zhu, X., Bian, H., & Wang, C. (2020). Effect of silane coupling agent on modification of areca fiber/natural latex. *Materials*, 13(21), 4896. Retrieved from <https://www.mdpi.com/1996-1944/13/21/4896>.
- Perera, H. J., Goyal, A., & Alhassan, S. M. (2022). Surface properties of alkylsilane treated date palm fiber. *Scientific Reports*, 12(1), 9760. doi:10.1038/s41598-022-13615-1.
- Tan, X., Jiang, Y., Peng, Q., Subrova, T., Saskova, J., Wiener, J., Venkataraman, M., Militky, J., Kejzlar, P., Mahendran, A. R., Lammer, H., Xiong, W. (2023). Development and characterization of silane crosslinked cellulose/graphene oxide conductive hydrophobic membrane. *Cellulose*, 30(7), 4561-4574. doi:10.1007/s10570-023-05079-x.
- Thakur, M. K., Gupta, R. K., & Thakur, V. K. (2014). Surface modification of cellulose using silane coupling agent. *Carbohydrate Polymers*, 111, 849-855. doi:https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.05.041.
- Tian, Q., Tang, Y., Ding, T., Li, X., & Zhang, Z. (2018). Effect of nano-silica surface-capped by bis[3-(triethoxysilyl)propyl] tetrasulfide on the mechanical properties of styrene-butadiene rubber/butadiene rubber nanocomposites. *Composites Communications*, 10, 190-193. doi:https://doi.org/10.1016/j.coco.2018.10.005.

- Utoiu, E., Manoiu, V. S., Oprita, E. I., & Craciunescu, O. (2024). Bacterial cellulose: a sustainable source for hydrogels and 3d-printed scaffolds for tissue engineering. *G e l s* , 1 0 (6) , 3 8 7 . doi:10.3390/gels10060387.
- Volova, T. G., Prudnikova, S. V., Kiselev, E. G., Nemtsev, I. V., Vasiliev, A. D., Kuzmin, A. P., & Shishatskaya, E. I. (2022). Bacterial cellulose (bc) and bc composites: production and properties. *Nanomaterials*, 12(2), 192. Retrieved from <https://www.mdpi.com/2079-4991/12/2/192>.
- Wang, M., Hao, X., & Wang, W. (2020). Reinforcing behaviors of sulfur-containing silane coupling agent in natural rubber-based magnetorheological elastomers with various vulcanization systems. *Materials (Basel)*, 13(22). doi:10.3390/ma13225163.
- Xie, Y., Hill, C. A. S., Xiao, Z., Miltitz, H., & Mai, C. (2010). Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 41(7), 806-819. doi:<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2010.03.005>.
- You, B., & Jin, S. (2024). Preparation of hydrophobic modified silica with si69 and its reinforcing mechanical properties in natural rubber. *Materials (Basel)*, 17(13). doi:10.3390/ma17133131.
- Yu, K., Yang, L., Wang, J., Zhu, Z., & Wang, T.-J. (2020). Modification of nanosilica particles with hydrophobic modifier bis[3-(triethoxysilyl)propyl]tetrasulfide by using micro-injection in aqueous solutions. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 599, 124852. doi:<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2020.124852>.