

**IMPREGNASI CAMPURAN NANOPARTIKEL  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
YANG DISINTESIS DARI PASIR BESI KE DALAM SILIKA  
MESOPORI**

**SKRIPSI**

*Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat Memperoleh Gelar Sarjana Sains*



Oleh :

**AGUNG CAHYADI**

**15036057/2015**

**PROGRAM STUDI KIMIA**

**JURUSAN KIMIA**

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM**

**UNIVERSITAS NEGERI PADANG**

**2019**

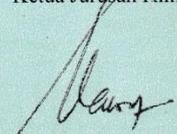
**PERSETUJUAN SKRIPSI**

**IMPREGNASI CAMPURAN NANOPARTIKEL  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
YANG DISINTESIS DARI PASIR BESI KE DALAM SILIKA  
MESOPORI**

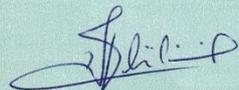
Nama : Agung Cahyadi  
NIM : 15036057  
Program Studi : Kimia  
Jurusan : Kimia  
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Padang, Agustus 2019

Mengetahui:  
Ketua Jurusan Kimia

  
Dr. Mawardi, M.Si  
NIP. 196111231989031002

Disetujui Oleh:  
Pembimbing

  
Dra. Syamsi Aini, M.Si, Ph.D  
NIP. 196507271992032010

## PENGESAHAN LULUS UJIAN SKRIPSI

Nama : Agung Cahyadi  
NIM : 15036057  
Program Studi : Kimia  
Jurusan : Kimia  
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

### IMPREGNASI CAMPURAN NANOPARTIKEL $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$ YANG DISINTESIS DARI PASIR BESI KE DALAM SILIKA MESOPORI

Dinyatakan lulus setelah dipertahankan di depan Tim Penguji Skripsi

Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

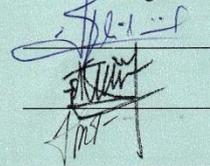
Universitas Negeri Padang

Padang, Agustus 2019

#### Tim Penguji

	Nama
Ketua	: Dra. Syamsi Aini, M.Si, Ph.D
Anggota	: Drs. Bahrizal, M.Si
Anggota	: Hary Sanjaya, M.Si

#### Tanda Tangan



Three handwritten signatures are present, each on a horizontal line. The top signature is in blue ink, the middle one is in black ink, and the bottom one is in black ink.

## SURAT PERNYATAAN

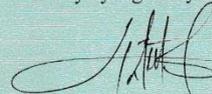
Saya yang bertanda tangan dibawah ini:

Nama : Agung Cahyadi  
NIM/BP : 15036057/2015  
Tempat/Tanggal Lahir : Bukit Gading/15 Maret 1997  
Program Studi : Kimia  
Jurusan : Kimia  
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Alamat : Blok A, Sitiung 4, Kec. Koto Besar, Dharmasraya

Dengan ini menyatakan bahwa skripsi saya yang berjudul "**Impregnasi Campuran Nanopartikel  $Fe_3O_4$ -  $Fe_2O_3$  yang Disintesis dari Pasir Besi ke dalam Silika Mesopori**" adalah benar merupakan hasil karya saya sendiri. Sepanjang pengetahuan saya, tidak terdapat karya atau pendapat yang ditulis atau dipublikasikan orang lain kecuali acuan atau kutipan dengan mengikuti tata penulisan karya ilmiah yang lazim. Apabila suatu saat nanti saya terbukti melakukan plagiat maka saya bersedia diproses dan menerima sanksi akademis maupun hukum sesuai dengan hukum negara yang berlaku, baik di Universitas Negeri Padang maupun masyarakat dan negara. Demikianlah Pernyataan ini saya buat dengan penuh kesadaran dan rasa tanggung jawab sebagai anggota masyarakat ilmiah.

Padang, Agustus 2019

Saya yang menyatakan,



Agung Cahyadi  
NIM.15036057

# **Impregnasi Campuran Nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang Disintesis dari Pasir Besi ke dalam Silika Mesopori**

**Agung Cahyadi**

## **ABSTRAK**

Pasir besi merupakan bahan alam yang tersedia sangat melimpah di Indonesia. Pasir besi yang sudah diolah menjadi nanopartikel magnetik memiliki nilai jual yang lebih dari pasir besi alami, hal ini dikarenakan nanopartikel magnetik dapat dijadikan sebagai bahan baku industri di bidang elektronik, sebagai katalis, dan terapi kanker. Akan tetapi sifat kimia dari nanopartikel magnetik (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) sangat reaktif dengan oksidator sehingga diperlukan penstabil seperti silika. Salah satu cara untuk menstabilkan nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> yaitu dengan metode impregnasi. Impregnasi nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ke dalam silika mesopori dilakukan menggunakan nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang disintesis dari bahan alam pasir besi Sijunjung, dan silika mesopori yang digunakan disintesis dari bahan alam pasir silika Sungai Nyalo. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh variasi massa silika (2,3 gram dan 1,05 gram) dan konsentrasi FeCl<sub>3</sub> (0,58 M; 0,029 M; 0,025 M) yang digunakan dalam proses impregnasi terhadap kemagnetan dari Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>@SiO<sub>2</sub> yang dihasilkan. Kemudian senyawa hasil dikarakterisasi menggunakan XRD. Impregnasi tiga jenis campuran nanopartikel Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> yang disintesis dengan konsentrasi FeCl<sub>3</sub> berbeda (0,058 M, 0,029 M, 0,025 M) telah berhasil dilakukan ke dalam silika mesopori. Campuran nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dalam silika mesopori yang dihasilkan (NP1@SiO<sub>2</sub>, NP2@SiO<sub>2</sub>, NP3@SiO<sub>2</sub>) dikarakterisasi dari morfologi, sifat magnet dan dengan difaktogram sinar-x. Campuran nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang telah berhasil diimpregnasikan ke dalam silika mesopori membentuk campuran homogen yang berwarna abu-abu kehitaman yang tidak dapat dibedakan antara silika mesopori dengan campuran nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> serta dapat ditarik oleh magnet. Hasil karakterisasi dengan XRD yang memperlihatkan puncak silika pada 2θ = 20.75, 25.71, nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada 2θ = 30.08, 35.43, 56.94, 62.53 dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada 2θ = 33.15, 35.63, 54.05 serta ukuran pori silika dalam range meso.

**Kata Kunci :** Nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,Silika Mesopori, Impregnasi

# **Impregnation of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanoparticle Mixtures Synthesized from Iron Sand into Mesoporous Silica**

**Agung Cahyadi**

## **ABSTRACT**

Iron sand is a very abundant natural material available in Indonesia. Iron sand that has been processed into magnetic nanoparticles has a selling value more than natural iron sand, this is because magnetic nanoparticles can be used as industrial raw materials in the electronics field, as a catalyst, and cancer therapy. However, the chemical properties of magnetic nanoparticles (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) are very reactive with oxidizing agents so that stabilizers such as silica are needed. One way to stabilize Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles is by the impregnation method. The impregnation of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles into mesoporous silica was carried out using Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles synthesized from natural materials of Sijunjung iron sand, and mesoporous silica used was synthesized from natural materials of the Nyalo River silica sand. This study aims to determine the effect of silica mass variations (2.3 grams and 1.05 grams) and FeCl<sub>3</sub> concentrations (0.58 M; 0.029 M; 0.025 M) used in the impregnation process on the magnetism of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> @ SiO<sub>2</sub> produced. Then the resulting compound was characterized using XRD. Impregnation of three types of mixtures of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles synthesized with different FeCl<sub>3</sub> concentrations (0.058 M, 0.029 M, 0.025 M) has been successfully carried out into mesoporous silica. The mixture of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles in mesoporous silica produced (NP1@SiO<sub>2</sub>, NP2@SiO<sub>2</sub>, NP3@SiO<sub>2</sub>) was characterized by morphology, magnetic properties and by x-ray diffraction. The mixture of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles that has been successfully impregnated into mesoporous silica forms a homogeneous mixture of blackish gray which cannot be distinguished between mesoporous silica from the mixture of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles and can be drawn by magnet. The results of characterization with XRD showed the silica peaks at 2θ = 20.75, 25.71, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles at 2θ = 30.08, 35.43, 56.94, 62.53 and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> at 2θ = 33.15, 35.63, 54.05 and the size of the silica pores in the meso range.

**Keywords:** Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanoparticles, Mesopore Silica, Impregnation

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis ucapkan kehadiran Allah SWT berkat rahmat dan hidayah-Nya yang melimpah sehingga penulis dapat menyelesaikan skripsi yang berjudul **“Impregnasi Campuran Nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang Disintesis dari Pasir Besi ke dalam Silika Mesopori”**. Shalawat dan salam kepada Nabi Muhammad SAW yang menjadi suri tauladan bagi seluruh umat di alam semesta ini. Skripsi ini diajukan untuk melengkapi dan memenuhi persyaratan kelulusan dalam rangka memperoleh gelar Sarjana S-1 pada Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Padang.

Dalam penulisan skripsi ini, penulis telah banyak mendapat bimbingan saran, bantuan, dorongan dan petunjuk dari berbagai pihak. Untuk itu penulis mengucapkan terima kasih yang tulus kepada :

1. Ibu Dra. Syamsi Aini, M.Si, Ph.D. sebagai dosen pembimbing sekaligus Penasehat Akademik (PA)
2. Bapak Dr. Mawardi, M.Si selaku Ketua Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Padang
3. Bapak Hary Sanjaya, M.Si selaku Ketua Program Studi Kimia FMIPA Universitas Negeri Padang sekaligus dosen penguji
4. Bapak Drs. Bahrizal, M.Si selaku dosen penguji
5. Seluruh staf pengajar dan tenaga administrasi Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Padang
6. Laboran Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Padang

7. Orang tua dan Keluarga yang telah memberi dukungan secara moril maupun materil
8. Rekan-rekan mahasiswa kimia angkatan 2015 yang memberikan ide, motivasi dan kritikan dalam penyusunan skripsi ini

Penulis mengharapkan kritik dan saran yang bersifat membangun dari dosen pembahas dan rekan-rekan mahasiswa untuk kesempurnaan skripsi ini. Semoga bimbingan, arahan dan bantuan yang diberikan kepada penulis menjadi amal ibadah dan diridhoi oleh Allah SWT.

Padang, Agustus 2019

Penulis

## DAFTAR ISI

ABSTRAK .....	ii
ABSTRACT .....	iii
KATA PENGANTAR.....	iv
DAFTAR ISI.....	vi
DAFTAR GAMBAR .....	viii
DAFTAR LAMPIRAN.....	ix
BAB I PENDAHULUAN .....	1
A. Latar Belakang .....	1
B. Batasan Masalah .....	4
C. Rumusan Masalah.....	5
D. Tujuan Penelitian .....	5
E. Manfaat Penelitian .....	5
BAB II KERANGKA TEORITIS.....	6
A. Nanopartikel Besi.....	6
B. Nanopartikel Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	7
C. Nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> .....	8
D. Silika Mesopori.....	13
E. Metode Impregnasi Nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> dalam Silika Mesopori .....	19
F. Karakterisasi Senyawa Hasil.....	20
BAB III METODE PENELITIAN.....	25
A. Waktu dan Tempat Penelitian.....	25
B. Alat dan Bahan.....	25
C. Prosedur Penelitian .....	25
1. Metode Sintesis .....	25
2. Metode Pengukuran.....	27
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN .....	29
A. Silika mesopori sebelum diimpregnasikan dengan campuran nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . .....	29
B. Pengaruh massa silika mesopori terhadap keberadaan nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> @SiO <sub>2</sub> yang dihasilkan.....	31
C. Pengaruh variasi konsentrasi FeCl <sub>3</sub> terhadap partikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> @SiO <sub>2</sub> yang dihasilkan. ....	34

BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	40
A.    Kesimpulan .....	40
B.    Saran .....	40
DAFTAR PUSTAKA .....	41
LAMPIRAN.....	43

## DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
1. Variasi Bentuk Silika Mesopori: (a) Sferik (b) Silinder (c) Lamelar .....	14
2. Berbagai Struktur Geometrik Pori : a) 2D Hexagonal p6mm, b) Kubik Bicontinuous Ia3d, c) Kubik Bikontinuous pn3m, d) Tipe Cage pm3n, dan e) Tipe Ccage Im3m .....	14
3. Struktur Family M41S, MCM-50 (layer / berlapis), MCM-41 (heksagonal), dan MCM-48 (kubik) .....	14
4. Struktur SBA-15 .....	15
5. Mesopori Silika Jenis MCM-41 .....	15
6. Diagram difraksi Bragg.....	21
7. Prinsip X-Ray Fluorescence.....	23
8. Pola Difraktogram Sudut Rendah Silika Mesopori.....	29
9. Analisa SEM Silika Mesopori.....	30
10. Pola difraktogram XRD nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> a.) NP1 b.) NP2 c.) NP3	32
11. a) massa silika 8% b) massa silika 16% .....	33
12. Gambar silika mesopori dan NP@SiO <sub>2</sub> .....	34
13. Pola difraktogram campuran nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> dalam silika mesopori a.) NP1@SiO <sub>2</sub> b.) NP2@SiO <sub>2</sub> c.) NP3@SiO <sub>2</sub> .....	35
14. Pola difraksi sinar-x sudut kecil silika mesopori a.) Silika mesopori sebelum b.) Silika mesopori setelah diimpregnasikan dengan campuran nanopartikel Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	38
15. Pola XRD dari Silika Mesopori .....	39

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Desain Penelitian.....	43
2. Sintesis Silika Mesopori.....	44
3. Sintesis Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .....	45
4. Impregnasi Campuran Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ke dalam Silika Mesopori..	46
5. Perhitungan .....	48
6. Grafik XRD nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ sebelum diimpregnasikan .....	49
7. Grafik XRD Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ Konsentrasi $\text{FeCl}_3$ 0,029 M.....	50
8. Grafik XRD Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ Konsentrasi $\text{FeCl}_3$ 0,025 M.....	51
9. Grafik Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ Setelah Diimpregnasikan ke dalam Silika Mesopori .....	52
10. Grafik Silika Mesopori Sebelum Dan Sesudah Impregnasi.....	55
11. Foto Kegiatan .....	56

## **BAB I PENDAHULUAN**

### **A. Latar Belakang**

Pasir besi merupakan bahan alam yang tersedia sangat melimpah di Indonesia. Pasir besi pada umumnya mempunyai komposisi utama besi oksida ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dan  $\text{FeO}$ ), silikon oksida ( $\text{SiO}_2$ ), serta senyawa-senyawa lain dengan kadar yang lebih rendah. Pasir besi merupakan salah satu material anorganik yang dapat digunakan sebagai bahan dasar untuk sintesis nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Komposisi kimia pasir besi dapat diketahui setelah dilakukan pengujian, misalnya dengan menggunakan XRD (*X-Ray Diffraction*) atau XRF (*X-Ray Fluorescence*), sehingga dapat digunakan dalam penelitian (Anwar, 2007). Pasir besi yang sudah diolah menjadi nanopartikel magnetik memiliki nilai jual yang lebih dari pasir besi alami, hal ini dikarenakan nanopartikel magnetik dapat dijadikan sebagai bahan baku industri di bidang elektronik, sebagai katalis, sebagai material untuk kegunaan sistem pengangkutan obat-obatan (*Drug Delivery System*), *Magnetic Resonance Imaging* (MRI), dan terapi kanker (Lao et al., 2004).

Nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dapat disintesis secara fisika dan kimia. Secara fisika yaitu dengan cara ditarik dengan magnet kemudian dilakukan penggilingan/milling menggunakan *High Energy Milling-Ellipse 3D Motion* hingga berukuran nano. Akan tetapi sintesis nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  secara kimia menghasilkan ukuran partikel yang tidak beraturan, kemurnian dan reaktivitas  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang dihasilkan lebih rendah. Sedangkan secara kimia dapat disintesis dengan beberapa metode salah satunya yaitu metode kopresipitasi. Nanopartikel magnetik yang disintesis secara kimia memiliki ukuran partikel yang beraturan dan reaktivitas yang lebih tinggi.

Sintesis nanopartikel magnetik telah dilakukan oleh beberapa peneliti, diantaranya, sintesis nanopartikel magnetik dari pasir besi yang dilakukan oleh Kurnia, L., (2010) dengan metode kopresipitasi yaitu pasir besi dilarutkan dalam 35 ml HCl 12,07 M pada suhu 70°C dan diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 30 menit kemudian disaring, filtrat yang terbentuk ditambahkan NH<sub>4</sub>OH dan diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 30 menit pada suhu 70°C kemudian disaring. Selanjutnya endapan dicuci dengan aquades dan dikeringkan pada suhu 70°C selama 2 jam, hasil yang diperoleh pada analisa hasil menggunakan XRD yaitu ukuran kristalnya  $10,9 \pm 0,3$  nm. Pada penelitian tersebut tidak dijelaskan berapa jumlah pasir besi dan NH<sub>4</sub>OH yang digunakan dalam penelitian.

Sintesis nanopartikel magnetik juga telah dilakukan oleh Wu, S. et al., (2011) menggunakan ultrasonik, akan tetapi prosedur yang dilakukan terlalu panjang dan berbelit-belit yaitu dengan cara pembentukan Fe(OH)<sub>3</sub> terlebih dahulu kemudian dilarutkan dengan asam menjadi FeCl<sub>3</sub> dan ditambahkan larutan FeSO<sub>4</sub>, ditambahkan larutan NaOH kemudian dionifikasi hingga terbentuk partikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Ukuran partikel yang diperoleh pada analisa menggunakan XRD yaitu 19,4 nm.

Pada penelitian pendahuluan telah dilakukan sintesis nanopartikel magnetik dari pasir besi daerah Sijunjung dengan memodifikasi dan menggunakan metoda yang digunakan oleh Laurent et al. (2008), Mahdavi, M. (2013), Zhang, G. (2014), dan Zhicuan Xu (2010). Pasir besi dilarutkan dalam HCl 12 M hingga terbentuk larutan FeCl<sub>2</sub> dan FeCl<sub>3</sub> kemudian disaring. Filtrat yang terbentuk diencerkan dengan aquades 180 ml. Selanjutnya filtrat di masukkan tetes demi tetes ke dalam larutan NH<sub>4</sub>OH yang telah ditambahkan

NaOH 8 M, endapan yang terbentuk dicuci dengan aquades dan disimpan dalam heksana. Ukuran partikel yang diperoleh pada penelitian pendahuluan yaitu  $\pm 5-30$  nm.

Sifat kimia dari nanopartikel besi magnetik ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) adalah sangat reaktif dengan oksidator, sementara secara fisika nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  mudah teraglomerasi. Dengan demikian  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam ukuran kecil harus dilindungi dari udara waktu penyimpanan dan penggunaan. Perlindungan/stabilisasi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dapat dilakukan dengan berbagai cara sebagai berikut : a.) Perlindungan Monomerik, yaitu perlindungan dengan cara mengikat gugus fungsi (sulfat, fosfat, atau karboksilat) pada permukaan magnetik, perlindungan monomerik bertujuan untuk memudahkan nanopartikel magnetik untuk tersebar merata dalam larutan organik maupun air. b.) Perlindungan menggunakan material anorganik. Senyawa yang paling umum digunakan sebagai perlindungan anorganik adalah silika dan emas. c.) Stabilizer polimer, polimer pelapis magnetik yang umum digunakan adalah dekstran, *carboxydextran*, pati, *polietilen glikol* (PEG), polivinil alkohol (PVA), *arabinogalactan*, chitosan dan olyoxamines ( Laurent, S et al.,2008) .

Pada penelitian ini menggunakan silika sebagai pelindung/stabilizer karena kelebihan menggunakan silika yaitu tahan terhadap asam dan tahan terhadap terhadap panas. Perlindungan oksida besi dengan menggunakan silika tidak mengurangi aktivitas katalitik terhadap berbagai reaksi kimia. Nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang dilapisi silika memiliki aktivitas katalitik untuk ; a). konversi gas CO dan  $\text{H}_2$  membentuk senyawa hidrokarbon enam kali lebih tinggi daripada oksida lepas (Marchetti, G., et all., 2014); b). degradasi azo-dye yang dapat digunakan berulang kali (Zhang, G., et all., 2014).

Sintesis nanopartikel  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam silika mesopori dan penggunaannya sebagai katalis telah dilakukan oleh Pariente, M.I. et al., (2015) menggunakan  $\text{FeCl}_3$  sebagai sumber Fe dan TEOS sebagai sumber silika. Penelitian sintesis silika mesopori dan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam silika mesopori umumnya menggunakan sumber alkoxi silika seperti TEOS atau TMOS, dan senyawa besi komersial yang berharga mahal ( $\text{FeCl}_3$ ,  $\text{FeSO}_4$ ,  $\text{Fe}(\text{ClO}_4)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dll.) [Granitzer. et al (2010), Essien, E. R. et al.(2011)]. Untuk itu perlu diteliti penggunaan sumber Si dan Fe yang tersedia di daerah dengan metoda sintesis yang lebih cocok dan lebih ekonomis.

Silika mesopori telah disintesis oleh Putri (2018) menggunakan sumber silika  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  yang disintesis dari bahan alam pasir silika daerah oleh Aini, S (2008). Hasil yang diperoleh yaitu morfologi silika yang terpisah satu sama lain dan berbentuk heksagonal dengan ukuran pori 4,17 nm, dengan waktu pematangan optimum dan pH campuran optimum adalah 6 jam pada pH 5.

Berdasarkan uraian di atas, maka penulis tertarik untuk mempelajari bagaimana memasukkan nanopartikel magnetik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ke dalam silika mesopori dengan cara impregnasi. Penelitian ini diberi judul “**Impregnasi Nanopartikel Magnetik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang Disintesis dari Pasir Besi ke dalam Silika Mesopori**”.

## **B. Batasan Masalah**

Agar penelitian ini lebih terarah, maka penelitian ini dibatasi pada pengaruh konsentrasi  $\text{FeCl}_3$  pada campuran nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$  yang disintesis terhadap ukuran  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{@SiO}_2$  yang dihasilkan.

### **C. Rumusan Masalah**

Rumusan masalah pada penelitian ini adalah :

1. Bagaimana pengaruh massa silika mesopori (2,3 gram; 1,05 gram) yang digunakan untuk impregnasi dengan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  terhadap kemagnetan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ @ $\text{SiO}_2$  yang dihasilkan?
2. Bagaimana pengaruh konsentrasi  $\text{FeCl}_3$  (0,072 M, 0,036 M, 0,03 M) terhadap kemagnetan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ @ $\text{SiO}_2$  yang dihasilkan?

### **D. Tujuan Penelitian**

Penelitian ini bertujuan untuk :

1. Untuk mengetahui pengaruh massa silika mesopori terhadap kemagnetan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ @ $\text{SiO}_2$  yang dihasilkan.
2. Untuk mengetahui pengaruh konsentrasi  $\text{FeCl}_3$  terhadap kemagnetan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ @ $\text{SiO}_2$  yang dihasilkan.

### **E. Manfaat Penelitian**

Hasil penelitian ini diharapkan memberikan informasi dan menambah ilmu pengetahuan terutama di bidang anorganik tentang impregnasi campuran nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dari pasir besi ke dalam silika mesopori secara efektif sehingga dapat dijadikan sumber untuk penelitian selanjutnya.

## **BAB II KERANGKA TEORITIS**

### **A. Nanopartikel Besi**

Pasir besi merupakan pasir dengan persentase Fe dalam bentuk mineral magnetit ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), hematit ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) dan maghemit ( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) tinggi dan pengotor berupa Ti, Si, Mn, Ca dan V dengan warna abu-abu kehitaman. Pasir besi memiliki rentang harga puluhan dollar sampai ratusan dolar per ton, bergantung pada kadar besi yang dikandungnya. Namun, sejak 2005 ekspor pasir besi mengalami penurunan dikarenakan dikenai bea ekspor. Pasir besi berukuran besar tidak memperlihatkan reaktivitas terhadap oksigen, namun apabila kena cahaya matahari menimbulkan panas. Sesuai dengan teori kuantum, logam dan oksida logam dalam ukuran nanometer ( $<100$  nm) akan memperlihatkan aktivitasnya sebagai katalis (Astruc, D. 2008).

Nanopartikel bersifat sangat reaktif karena permukaan sentuhnya lebih besar dibandingkan dengan ukuran bulk-nya. Contoh aplikasi nanopartikel yakni sebagai nanokatalis. Letak keunggulan nanokatalis dibandingkan katalis biasa yakni keduanya memiliki massa yang sama, tetapi dengan dimensi yang berbeda. Dalam skala nano, nanokatalis memiliki luas permukaan sentuh lebih besar sehingga ikatan antara satu partikel dengan partikel lain lebih mudah terbentuk, kemudian jumlah pereaksi lebih besar karena ukuran yang lebih kecil. Partikel nano magnetik memiliki sifat fisis dan kimia yang bervariasi dan dapat diaplikasikan dalam berbagai bidang. Salah satu partikel magnetik tersebut yang dapat dijadikan berukuran nanometer adalah besi oksida (Lao et al., 2004).

Beberapa sifat oksida besi diantaranya adalah :

- a) Besi (II) oksida (FeO) atau oksida besi juga dikenal sebagai wustite dalam bentuk mineral. Bubuk oksida hitam ini dapat menyebabkan ledakan seperti mudah terbakar.
- b) Besi (III) oksida ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), atau oksida besi juga dikenal sebagai bijih besi (bentuk alfa) atau *maghemite* (bentuk gamma) dalam bentuk mineral. Setelah dimurnikan, besi oksida digunakan sebagai lapisan dalam media audio dan computer.
- c) Besi (II,III) oksida ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), juga dikenal sebagai *magnetite* atau magnet dalam bentuk mineral (RM Cornell, 2003).

Lao et al., (2004) meneliti bahwa partikel nano ini dapat dimanfaatkan sebagai material untuk kegunaan sistem pengangkutan obat-obatan (Drug Delivery System = DDS), *Magnetic Resonance Imaging* (MRI), dan terapi kanker. Agar dapat diaplikasikan dalam berbagai bidang tersebut, sangatlah penting untuk mempertimbangkan ukuran partikel, sifat magnetik, dan sifat permukaan dari partikel nano itu sendiri.

## **B. Nanopartikel $\text{Fe}_2\text{O}_3$**

Nanokatalis adalah bahan yang berfungsi sebagai katalis yang memiliki dimensi dalam skala nano (<100 nm). Salah satu material yang dapat dijadikan sebagai nanokatalis yakni ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (III) oksida). Besi (III) oksida atau yang biasa dikenal dengan sebutan bijih besi merupakan senyawa yang banyak ditemukan secara alami dan biasanya ditemukan dalam bebatuan atau pasir. Secara alamiah bahan-bahan tersebut ditemukan dalam bentuk mineral berupa *magnetite* ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), *maghemite* ( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ), dan *hematite* ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ). Untuk

mengubah fasa dari oksida tersebut dapat dilakukan secara kalsinasi  $200^{\circ}\text{C}$  (*maghemite*), dan  $300^{\circ}\text{C} - 600^{\circ}\text{C}$  untk memperoleh fasa *hematite*.

Nanokatalis berbasis besi oksida ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) merupakan katalis heterogen yang bekerja dengan reaksi fenton. Hasil penelitian Zelmanov dan Zelmiat menunjukkan rata-rata degradasi glikol etilen dan fenol 35 kali lebih tinggi dengan menggunakan nanokatalis  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  daripada menggunakan nanokatalis homogen reaksi foto-Fenton. Reaksi fenton adalah reaksi yang terjadi antara hidrogen peroksida dengan besi oksida Fe(III) atau logam transisi lainnya. Reaksi fenton dapat menjadi katalis dengan larutan Fe(III) nanopartikel yang bertindak sebagai katalis heterogen. Dengan melekatkan katalis Fe(III) di dalam silika mesopori, menyebabkan katalis tersebut tidak berikatan dengan air sehingga gugus hidroksil dan hidrogen peroksida dapat mengikat komponen organik di dalam limbah air.

Salah satu aplikasi dari nanokatalis  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ketika bereaksi dengan air akan menghasilkan gugus hidroksil yang dapat bereaksi dengan senyawa organik pada limbah. Proses tersebut disebut reaksi fenton. Nanokatalis  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  akan memiliki kereaktifan yang tinggi apabila disanggah dengan mesopori silika. Senyawa besi (III) oksida dapat dijebak dalam pori zeolite secara termal di dalam silika mesopori.

### **C. Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$**

Nanopartikel magnetik telah menjadi material menarik yang dikembangkan karena sifatnya yang terkenal dan sangat potensial dalam aplikasinya di berbagai bidang. Nanopartikel berbasis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  telah secara luas digunakan dalam imobilisasi dan pemisahan protein atau enzim. Selain itu juga digunakan untuk menghilangkan unsur-unsur beracun dari limbah industri,

sedangkan nanomagnetik film secara luas digunakan dalam perangkat listrik dan elektronik, sensor, penyimpanan digital yang memiliki kerapatan tinggi dan melindungi elektromagnetik, magnetik film juga telah banyak dipelajari dan diterapkan dalam tumor *hyperthermia* sebagai perantara yang memandu medan magnet untuk melokalisasikan terapi radioaktif dan obat-obatan (Thaib, S., et al.2015).

Secara kimia ada beberapa metode yang umum untuk sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  [Laurent, S., et al.(2008) & Lu, A.-H., et al.(2007)], yaitu :

a) Co-presipitasi

Co-presipitasi adalah cara paling mudah dan aman untuk mensintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dari larutan garam Fe dengan penambahan basa untuk pengendapan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  pada suhu ruang. Ukuran bentuk dan komposisi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ditentukan oleh jenis garam yang digunakan ( klorida, nitrat atau sulfat), rasio  $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ , temperatur reaksi, nilai pH larutan.

Pembentukan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  secara kimia dapat ditulis sebagai berikut :



Pengendapan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  terjadi pada pH 8-14 dengan rasio  $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$  adalah 2:1. Namun magnetic ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) yang terbentuk tidak stabil, cenderung teroksidasi membentuk  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dengan kberadaan oksigen. Karena  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  kurang stabil maka diperlukan pelindung berupa oksida logam, logam, silika atau fosfat yang stabil.

#### b) Dekomposisi thermal

Metode dekomposisi thermal dilakukan pada senyawa organologam (organo-Fe) yang bersifat metastabil, dalam pelarut organik titik didih tinggi dan mengandung surfaktan sebagai penstabil. Ukuran dan bentuk nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang terbentuk ditentukan oleh suhu reaksi, waktu dan rasio reagen (senyawa organologam, pelarut, dan surfaktan) yang digunakan. Jika senyawa organologam yang digunakan adalah logam dengan bilangan oksidasi nol seperti Fe-pentacarbonyl, maka produk yang didapat adalah nanopartikel besi, bukan oksida, hingga perlu langkah kedua penambahan oksidan pada temperatur tinggi untuk menghasilkan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ .

#### c) Mikroemulsi

Metode mikroemulsi dilakukan dengan membuat emulsi air dengan senyawa organik sebagai nano reaktor, ditambah surfaktan dan larutan garam besi dalam suasana asam (HCl), sementara proses pengendapan nanopartikel magnetic dimulai ketika campuran emulsi dan larutan garam besi dipertahankan dalam suasana basa dengan penambahan *cyclohexylamine*. Secara kimia metode mikroemulsi sama dengan metode co-presipitasi, yaitu larutan garam besi yang diendapkan dengan penambahan basa, tetapi menggunakan nanoreaktor. Namun bentuk dan ukuran magnetik yang dihasilkan tidak sama, dan penggunaan pelarut yang banyak menyebabkan metoda mikroemulsi ini tidak efisien.

#### d) Hydrothermal

Pada metoda hydrothermal reaksi berlangsung dalam pelarut air dan senyawa organik dalam reaktor autoclave pada tekanan tinggi dan dipanaskan pada temperatur sampai di bawah 200°C. Ukuran partikel yang dihasilkan ditentukan oleh jenis pelarut, temperatur dan lama reaksinya. Sementara kristanilitas magnetik yang dihasilkan ditentukan oleh laju nukleasi, pertumbuhan biji, dan kedua laju ini ditentukan oleh temperatur reaksi.

Beberapa tahun belakangan ini, para peneliti dapat mensintesis partikel nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dengan metode-metode yang berbeda. Seperti metode sol gel yang dikembangkan oleh Xu et al., (2007). Lain lagi yang dilakukan Lida et al., (2007) yang memilih mensintesis partikel nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dengan metode hidrolisis terkontrol, sedangkan Hong et al., (2007) memilih metode kopresipitasi dalam air. Diantara sekian metode sintesis tersebut, metode kopresipitasi yang paling sederhana karena prosedurnya lebih mudah dilakukan dan memerlukan suhu reaksi yang rendah (<100°C). Metode kopresipitasi merupakan proses kimia yang membawa suatu zat terlarut ke bawah sehingga terbentuk endapan yang dikehendaki. Teknik ini sering dipakai untuk memisahkan analit dari pengotornya.

Sintesis partikel nano Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dengan metode kopresipitasi, perbandingan/rasio antara ion ferrous (Fe<sup>2+</sup>) dan ion ferric (Fe<sup>3+</sup>) dalam medium basa (alkali) sangat mempengaruhi hasil akhir sintesis. Efeknya meliputi rentang diameter ukuran partikel dan sifat magnetik yang dihasilkan, telah dilaporkan bahwa valensi garam logam yang digunakan dalam sintesis memegang peranan penting dalam menentukan ukuran partikel. Dalam hal ini ukuran partikel nano

$\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan variasi presentase molar ion ferrous terhadap jumlah total ion besinya dalam rentang ~9 nm sampai ~40 nm (Iida et al., 2007).

Pada penelitian lain diungkapkan bahwa pH dan suhu larutan garam besi selama proses kopresipitasi sangat mempengaruhi pembentukan magnetit. Ukuran partikel rata-rata yang diperoleh dengan pH awal larutan 0,7; 1,5; 3; 4,7; berturut-turut adalah 6,4; 7,6; 9,9; dan 9,9 nm. Penentuan partikel ini sangat penting karena disesuaikan dengan aplikasinya nanti. Misalnya, untuk mengontrol target seperti protein, gen, dan sel diperlukan partikel berukuran diameter berturut-turut 5-50 nm, 2 nm dan panjang 10-100 nm (Gnanaprakash et al., 2007).

Sifat kimia dari nanopartikel besi magnetik ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) adalah sangat reaktif dengan oksidator atau udara, sementara secara fisika nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  mudah teraglomerasi. Dengan demikian  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam ukuran kecil harus dilindungi dari udara waktu penyimpanan dan penggunaan. Perlindungan/stabilisasi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dapat dilakukan dengan beberapa cara sebagai berikut :

a) Perlindungan Monomerik

Yaitu perlindungan dengan cara mengikatkan gugus fungsi (sulfat, fosfat, atau karboksilat) pada permukaan magnetic. Stabilizer gugus fungsi ini bertujuan untuk memudahkan nanopartikel magnetic untuk tersebar merata dalam larutan organik maupun air.

b) Perlindungan menggunakan material anorganik

Senyawa anorganik yang umum digunakan untuk mengimmobilisasi magnetik adalah silika dan emas.

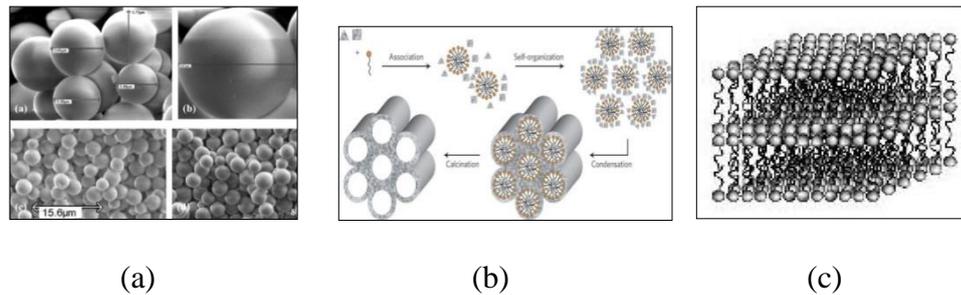
c) Stabilizer polimer

Polimer pelapis (*coating*) magnetik yang umum digunakan adalah, dekstran, *carboxymethylated* dekstran, *carboxydextran*, pati, *arabinogalactan*, *glikosaminoglikan*, tersulfonasi *stirena-divinylbenzene*, *polietilen glikol* (PEG), polivinil alkohol (PVA), Polaksamer-poloksamer, dan olyoxamines.

Perlindungan Oksida besi dengan material anorganik seperti silika tidak mengurangi aktivitas katalitik terhadap berbagai reaksi kimia, seperti nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang dilapisi silika memiliki aktivitas katalitik untuk; a). konversi gas CO dan  $\text{H}_2$  membentuk senyawa hidrokarbon enam kali lebih tinggi dari pada oksida lepas (Marchetti, S. G., 2002); b). Degradasi azo-dye dan dapat digunakan berulang kali (Zhang, G., et al., 2014); reduksi p-nitrophenol dengan aktivitas katalitik lebih tinggi dari pada Au- $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dilapisi silika (Liu, H. et al., 2013).

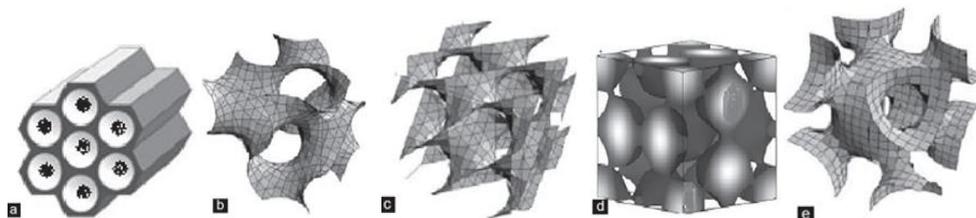
**D. Silika Mesopori**

Silika mesopori adalah oksida logam silikon yang merupakan polikondensasi spesies silika Si-O-Si membentuk pori dengan ukuran 2-50 nm dengan berbagai morfologi (Zhao and Wan, 2007). Ukuran partikel nanopori mempunyai rentang 1-100 nm, sehingga semua partikel mesopori bisa dianggap sebagai nanopori. Silika mesopori memiliki bentuk yang berbeda-beda seperti sperik, silinder, atau lamelar, seperti tampak pada gambar di bawah ini:



Gambar 1. Variasi Bentuk Silika Mesopori: (a) Sferik (b) Silinder (c) Lamelar (Ma, Y., et al., 2003)

Silika mesopori juga memiliki struktur geometrik pori yang berbeda-beda, seperti 2D hexagonal  $p6mm$ , kubik bicontinuous  $la3d$ , kubik bikontinuous  $pn3m$ , tipe cage  $pm3n$  dan tipe cage  $lm3m$ .

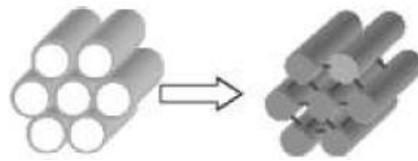


Gambar 2. Berbagai Struktur Geometrik Pori : a) 2D Hexagonal  $p6mm$ , b) Kubik Bicontinuous  $la3d$ , c) Kubik Bikontinuous  $pn3m$ , d) Tipe Cage  $pm3n$ , dan e) Tipe Cage  $lm3m$  (Zhao et al, 2015)

Contoh material mesopori adalah material mesopori silika M41S (MCM-41, MCM-48, MCM-50) dan SBA-15. Material mesopori pertama kali disintesis adalah jenis M41S oleh Peneliti dari *Mobil Company*, Jepang (Yunita, 2013).

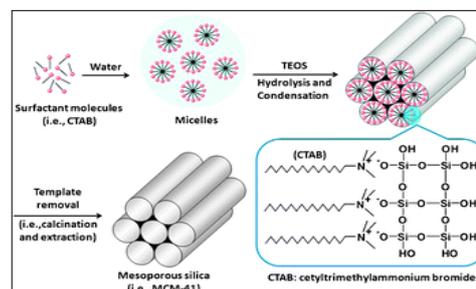


Gambar 3. Struktur Family M41S, MCM-50 (layer / berlapis), MCM-41 (heksagonal), dan MCM-48 (kubik) (AlOthman, 2012)



SBA-15      Replika struktur pori  
Gambar 4. Struktur SBA-15 (Johansson, 2008)

MCM-41 merupakan salah satu jenis M41S yang disintesis melalui mekanisme template-surfaktan menggunakan hidrolisis sumber silika dalam air yang mengandung surfaktan membentuk misel melalui proses *self-assembly* (pemasangan secara mandiri). MCM-41 membentuk susunan heksagonal yang memiliki pori seragam dengan ukuran 1,5 nm – 10 nm, memiliki luas permukaan lebih dari 700 m<sup>2</sup>/g, kapasitas penyerapan hidrokarbon 0,7 mL/g atau lebih besar, oleh karenanya banyak digunakan dibidang katalis, filtrasi, dan pemisahan.



Gambar 5. Mesopori Silika Jenis MCM-41 (Yang., et al, 2014)

Jenis silika mesopori sperik pertama kali disintesis menggunakan metode modifikasi dari prosedur Strober (Kosuge, 2004). Silika mesopori sperik mono-dispersi disintesis menggunakan prosedur sederhana, sintetik reaksi dalam campuran larutan yang terdiri atas larutan Na-silikat, triblok kopolimer pluronik, dan HCl atau HNO<sub>3</sub> tanpa zat aditif. Penggunaan NO<sub>3</sub><sup>-</sup> sebagai mediasi menghasilkan partikel sperik mono-dispersi lebih bervariasi dengan diameter lebih besar dari 100 μm. Mesopori sperik mono-dispersi dengan ukuran 100 μm dapat diaplikasikan secara luas di industri katalis, pemisahan, dan adsorbs, karena

partikel ini dapat dengan mudah dimasukkan ke dalam reaktor atau kolom dalam berbagai sistem reaksi. Sferik mono-dispersi dengan kualitas bagus diperoleh dengan laju pengadukan pada rentang 500 – 700 rpm.

Selain M41S dan silika mesopori sferik, terdapat silika mesopori lain yang disebut SBA-15 yang disintesis pada tahun 1997 oleh perusahaan Stucky. SBA-15 berbentuk heksagonal teratur disintesis dengan menggunakan amfifilik blok kopolimer PEO-PPO-PEO untuk mengarahkan proses polimerisasi silika. Dengan memilih panjang blok kopolimer dan kondisi reaksi, ukuran pori bervariasi mulai dari 4,6 nm – 30 nm (Liu, 2007). MCM-41 dan SBA-15 sama-sama menggunakan surfaktan untuk mengarahkan dan merakit blok yang terbentuk menjadi struktur mesopori yang teratur.

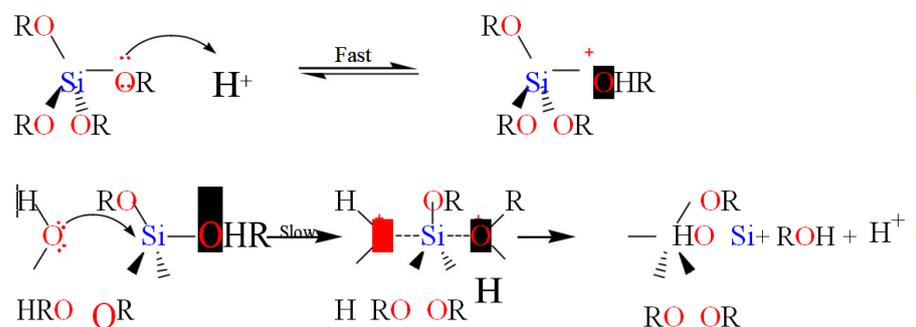
Ada beberapa metoda yang dapat digunakan untuk mensintesis silika mesopori, metoda yang paling umum digunakan adalah metoda sol-gel dan metoda hidrotermal. Metoda hidrotermal dilakukan bila menggunakan templat kation dan anion, sementara metoda sol-gel pada temperatur ruang digunakan bila memakai templet non-ionik dan keberadaan garam. Sementara, metoda sonokimia, dan metoda spray drying dilakukan dengan tujuan berturut-turut untuk membuat larutan awal lebih homogen dan proses pengeringan / kondensasi berjalan lebih cepat.

Pada prinsipnya metoda sol-gel dimulai dari pembentukan larutan surfaktan dan prekursor, dilanjutkan pembentukan sol, gel, pengendapan dan diakhiri dengan pelepasan surfaktan. Namun pada metoda hidrotermal tahap pembentukan gel dan kondensasi dibantu oleh suhu sampai temperatur 180 °C.

Sementara, pada proses sol-gel pembentukan sol, gel dan pembentukan padatan berlangsung secara bertahap dengan bantuan garam dan pH larutan pada temperatur rendah (ruang), hingga ukuran dan morfologi silika mesopori yang dihasilkan lebih homogen (Yu, C., *et al* 2001).

Pada metoda hidrotermal, proses pemanasan dipercaya meneruskan proses kondensasi silika pada lapisan lebih luar dari permukaan surfaktan yang utama. Hal ini dibuktikan oleh Yu, Q., *et al.* (2012), bahwa pendinginan yang dilakukan dengan air kran setelah proses hydrothermal akan menghasilkan bulatan silika mesopori berukuran kecil, dibanding dengan pendinginan dibiarkan sampai temperatur kamar. Sementara metoda sol-gel proses pada temperatur kamar dengan keberadaan garam dapat menghasilkan silika mesopori dengan bentuk dan ukuran yang homogen (Yu, C., *et al.*, 2001).

Sintesis silika mesopori dapat dilakukan dalam suasana asam dan suasana basa. Kelebihan mensintesis silika mesopori dalam suasana asam adalah surfaktan yang digunakan lebih stabil dalam suasana asam. Mekanisme reaksi sintesis silika mesopori dalam suasana asam adalah :



sedangkan reaksi sintesis silika mesopori dalam suasana basa adalah



(AlOthman, 2012)

Silika mesopori telah diaplikasikan dalam berbagai bidang, seperti fasa diam untuk kromatografi, material penguat polimer, pendukung enzim dalam biomedis, pengimmobilisasi nanopartikel logam/oksida logam dalam sintesis katalis heterogen dan lain-lain (Giraldo, L. F., et al. 2007, Lai. C. Y. 2013). Dalam sintesis katalis heterogen silika mesopori dapat dijadikan sebagai stabilisator nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , karena silika tahan terhadap asam dan tahan terhadap panas serta tidak mengurangi aktivitas katalitik terhadap berbagai reaksi kimia.

Perlindungan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  menggunakan silika dapat dilakukan dengan beberapa cara, diantaranya adalah :

- a) Dengan cara melapisi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  menggunakan silika mesopori (coating). Akan tetapi kelemahan dengan cara ini yaitu kapasitas penyimpanan yang relatif rendah, hal ini disebabkan oleh volume pori yang terbatas dan kepadatan partikel magnetik yang relatif tinggi (Zhao, W et al., 2008).
- b) Dengan cara impregnasi, yaitu menempelkan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ke dalam pori silika. Kelebihan menggunakan metode ini yaitu lebih cepat, murah dan memungkinkan sifat dan konfigurasi akhir untuk

dapat dikendalikan di permukaan. Akan tetapi metode impregnasi terbatas, terutama pada sintesis katalis dengan konsentrasi tinggi (Nasrallah, 2018).

#### **E. Metode Impregnasi Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$ dalam Silika Mesopori**

Impregnasi merupakan metode preparasi katalis dimana volume tertentu dari larutan yang mengandung prekursor dari fasa aktif dikontakkan dengan padatan (fasa padat aktif lain). Kemudian dikeringkan untuk menghilangkan pelarut yang diserap. Beberapa tipe metode impregnasi adalah :

- a) Impregnasi basah (wet impregnation), yaitu kelebihan volume larutan konsentrasi yang digunakan dari volume pori fasa padat aktif lain. Kemudian dilakukan pemanasan untuk menghilangkan pelarut yang diserap.
- b) Impregnasi kering, yaitu volume larutan konsentrasi yang digunakan sedikit kurang atau sama dari volume fasa padat aktif lain. Setelah katalis diimpregnasikan ke fasa aktif lain, kemudian dikeringkan dan dikalsinasi (Nasrallah, 2018).

Faktor-faktor yang mempengaruhi metode impregnasi adalah suhu dan konsentrasi prekursor. Variabel operasi adalah suhu, pemuatan maksimum dibatasi oleh kelarutan prekursor dalam larutan. Selain itu, konsentrasi senyawa yang diimpregnasi tergantung pada perpindahan massa dalam pori selama impregnasi dan pengeringan (Nasrallah, 2018).

Kelebihan dari metode impregnasi adalah lebih cepat, murah dan memungkinkan sifat dan konfigurasi akhir untuk dapat dikendalikan di

permukaan. Akan tetapi metode impregnasi terbatas, terutama pada sintesis katalis dengan konsentrasi tinggi (Nasrallah, 2018). Metode impregnasi basah memiliki keuntungan besar bila dibandingkan dengan metode lain dalam penyusunan katalis. Hal ini dapat dikaitkan untuk mengubah transportasi larutan dari proses kapiler untuk proses difusi yang jauh lebih lambat (Jong, 2009).

Surowiec, Z et al., (2010) mengimpregnasikan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam silika mesopori yang disintesis dari TEOS, dengan cara memasukkan 5% larutan  $\text{Fe}^{3+}$  ke dalam pori silika selama 0,5 jam, kemudian dikeringkan selama 1 jam dan dikalsinasi pada suhu  $300^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Hasil yang diperoleh yaitu ukuran butir rata-rata 13,0 nm.

## **F. Karakterisasi Senyawa Hasil**

Karakterisasi sampel dilakukan dengan tiga pengujian yaitu XRD, XRF, dan SEM. Pengujian XRD digunakan untuk untuk melihat difraktogram (pola difraksi sinar-X) suatu padatan kristal. Pengujian XRF (pola fluoresensi sinar-X) untuk menganalisis kandungan unsur dalam sampel. Pengujian SEM digunakan untuk melihat morfologi objek mikroskopis dengan perbesaran yang cukup tinggi.

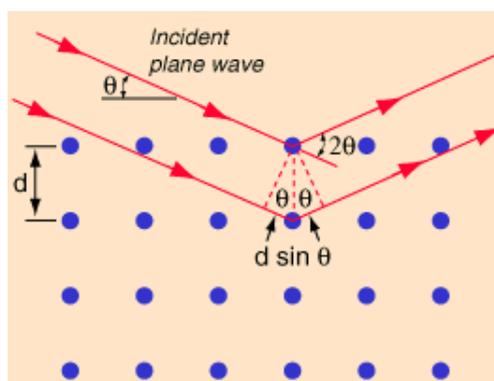
### **1. Karakterisasi Difraktometer sinar-X (XRD)**

Difraktometer sinar-X adalah suatu alat yang dapat digunakan untuk melihat difraktogram (pola difraksi sinar-X) suatu padatan kristal yang bila diberi sinar-X. Difraktometer sinar-X (XRD) umumnya digunakan sebagai metode mengkarakterisasi struktur kristal suatu materi pada  $2\theta$  10-100 dan juga untuk menentukan ada atau tidaknya pori pada suatu materi. Materi yang memiliki pori antara 2-50 nm (meso) akan memberikan puncak difraktogram pada  $2\theta$  1-10

dengan pola satu atau dua puncak pada  $2\theta$  1-3 (1, 3/2, 3), diiringi oleh puncak kecil pada  $2\theta$  5-10. Suatu kristal memiliki bidang yang dibentuk oleh atom-atom yang tertata secara teratur. Sinar-X yang mengenai bidang akan didifraksikan dengan sudut tertentu sesuai dengan sudut sinar datang. Setiap padatan yang berstruktur kristal tertentu akan memiliki jarak antar bidang tertentu ( $d$ ) dan sudut difraksi tertentu ( $2\theta$ ). Hubungan panjang gelombang sinar-X yang datang ( $\lambda$ ) pada bidang kristal dengan jarak antar bidang ( $d$ ) dan sudut difraksi ( $\theta$ ), tingkat difraksi ( $n$ ), dapat dijelaskan oleh persamaan Bragg di bawah ini.

$$n\lambda = 2d \sin 2\theta$$

$\lambda$  adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan,  $d$  adalah jarak antara dua bidang kisi,  $\theta$  adalah sudut antara sinar datang dengan bidang normal, dan  $n$  adalah bilangan bulat yang disebut sebagai orde pembiasan.



Gambar 6. Diagram difraksi Bragg

Berdasarkan persamaan Bragg, jika seberkas sinar-X di jatuhkan pada sampel kristal, maka bidang kristal itu akan membiaskan sinar-X yang memiliki panjang gelombang sama dengan jarak antar kisi dalam kristal tersebut. Sinar yang dibiaskan akan ditangkap oleh detektor kemudian diterjemahkan sebagai sebuah puncak difraksi. Makin banyak bidang kristal yang terdapat dalam sampel, makin kuat intensitas pembiasan yang dihasilkannya. Tiap puncak yang muncul

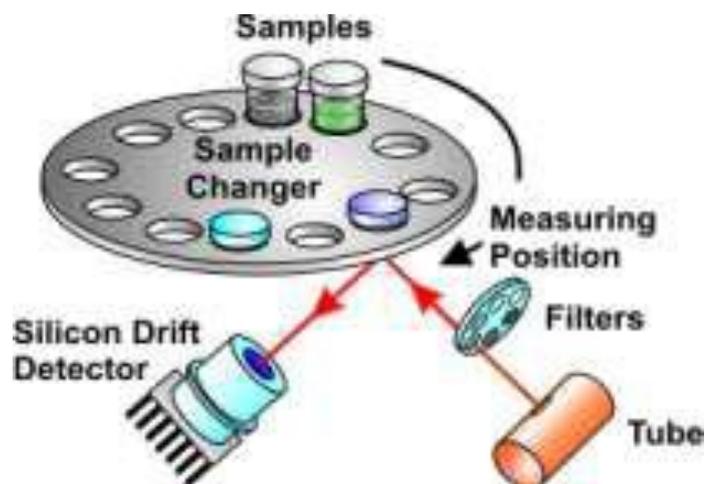
pada pola XRD mewakili satu bidang kristal yang memiliki orientasi tertentu dalam sumbu tiga dimensi. Puncak-puncak yang didapatkan dari data pengukuran ini kemudian dicocokkan dengan standar difraksi sinar-X untuk hampir semua jenis material. Standar ini disebut JCPDS.

Hasil yang diperoleh dari pengukuran dengan menggunakan instrument Difraktometer sinar-X (XRD) adalah grafik difraktogram. Difraktogram adalah output yang merupakan grafik antara  $2\theta$  (*diffraction angle*) pada sumbu X versus intensitas pada sumbu Y.

$2\theta$  merupakan sudut antara sinar datang dengan sinar pantul. Sedangkan intensitas merupakan jumlah banyaknya X-Ray yang didifraksikan oleh kisi-kisi kristal yang mungkin. Kisi kristal ini juga tergantung dari kristal itu sendiri. Kisi-kisi ini dibentuk oleh atom-atom penyusun kristal. Jika tidak ada atom-atom yang menyusun suatu bidang kisi pada kristal, maka sinar X yang datang tidak dapat didifraksikan atau dengan kata lain tidak ada kisi tersebut.

## **2. Karakterisasi Floresensi sinar-X (XRF)**

Analisis menggunakan XRF dilakukan berdasarkan identifikasi dan pencacahan karakteristik sinar-X yang terjadi dari peristiwa efek fotolistrik. Efek fotolistrik terjadi karena elektron dalam atom target (sampel) terkena berkas berenergi tinggi (radiasi gamma, sinar-X). Bila energi sinar tersebut lebih tinggi dari pada energi ikat elektron dalam orbit K, L, atau M atom target menyebabkan elektron atom target akan keluar dari orbitnya. Dengan demikian atom target akan mengalami kekosongan elektron. Kekosongan elektron ini akan diisi oleh elektron dari orbital yang lebih luar diikuti pelepasan energi yang berupa sinar-X. Skematik proses identifikasi dengan XRF tampak pada Gambar 2.3



Gambar 7. Prinsip X-Ray Fluorescence

Sinar-X yang dihasilkan merupakan gabungan spektrum sinambung dan spektrum berenergi tertentu (*discreet*) yang berasal bahan sasaran yang tertumbuk elektron. Jenis spektrum *discreet* yang terjadi tergantung pada perpindahan elektron yang terjadi dalam atom bahan. Spektrum ini dikenal dengan spektrum sinar-X karakteristik. Spektrometri XRF memanfaatkan sinar-X yang dipancarkan oleh bahan yang selanjutnya ditangkap detektor untuk dianalisis kandungan unsur dalam bahan. Bahan yang dianalisis dapat berupa padat massif, pelet, maupun serbuk.

Analisis unsur dilakukan secara kualitatif maupun kuantitatif. Analisis kualitatif menganalisis jenis unsur yang terkandung dalam bahan dan analisis kuantitatif dilakukan untuk menentukan persentasi unsur dalam bahan. Sinar-X yang dihasilkan dari peristiwa di atas ditangkap oleh detektor semi konduktor Silikon Litium (SiLi) (Munasir, dkk. 2012).

### **3. Karakterisasi *Scanning Electron Microscopy* (SEM)**

*Scanning electron microscopy* (SEM) merupakan alat karakterisasi yang digunakan untuk melihat objek mikroskopis dengan perbesaran yang cukup tinggi. Signal yang berasal dari interaksi elektron dan sampel akan memberikan informasi tentang morfologi luar (tekstur) sampel. Prinsip kerja dari SEM ini adalah dengan menggambarkan permukaan benda atau material dengan berkas electron yang dipantulkan dengan energi tinggi. Permukaan material yang disinari atau terkena berkas elektron akan memantulkan kembali berkas elektron atau dinamakan berkas elektron sekunder ke segala arah. Tetapi dari semua berkas elektron yang dipantulkan terdapat satu berkas elektron yang dipantulkan dengan intensitas tertinggi.

Detektor yang terdapat di dalam SEM akan mendeteksi berkas elektron berintensitas tertinggi yang dipantulkan oleh benda atau material yang dianalisis. Dapat juga menentukan lokasi berkas elektron yang berintensitas tertinggi. Dengan memanfaatkan berkas pantulan dari sampel maka informasi dapat di ketahui dengan menggunakan program pengolahan citra yang terdapat dalam komputer.

## **BAB V KESIMPULAN DAN SARAN**

### **A. Kesimpulan**

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat diambil kesimpulan sebagai berikut :

1. Semakin banyak massa silika mesopori yang digunakan untuk impregnasi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ke dalam silika mesopori maka semakin sedikit nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$  dibandingkan dengan silika mesopori sehingga daya tarik magnet juga semakin kecil.
2. Semakin kecil konsentrasi  $\text{FeCl}_3$  yang digunakan maka semakin kecil ukuran partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$  sehingga semakin banyak masuk ke dalam pori silika dan memiliki daya tarik magnet yang kuat dan berkemungkinan dapat digunakan sebagai katalis yang bersifat *reuseable*.

### **B. Saran**

Untuk mengetahui morfologi dari nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3$  sebelum dan setelah diimpregnasikan, maka perlu dilakukan karakterisasi menggunakan SEM. Kemudian agar penelitian ini dapat diaplikasikan sebagai katalis.

## DAFTAR PUSTAKA

- AlOthman, A. Z. 2012. A Review: Fundamental Aspects of Silicate Mesoporous Materials. *Materials* 2012, 5, 2874-2902; doi: 10.3390/ma5122874.
- Essien, E., R., Olaniyi, O., A., Adams, L., A., Shaibu. R., O., (2011). *Highly Porous Silica Network Prepared from Sodium Metasilicate*. *Journal of Metals, Materials and Minerals*, **21**(2). 7-12.
- Giraldo, L. F., et al. (2007). *Mesoporous Silica Applications*. *Macromolecular Symposia*. 258(1): 129-141.
- Granitzer, P., Rumpf, K., Roca, A., Morales, M., Poelt, P., & Albu, M. (2010). *Investigation of a Mesoporous Silicon Based Ferromagnetic Nanocomposite*. *Nanoscale Research Letters*, 5(2), 374-378. <http://doi.org/10.1007/s11671-009-9491-7>
- Johansson, E. 2008. *Design of Mesoporous Silica Templates for Nanoparticle Growth*. Thesis for the degree of Master of Science.
- Kosuge, K., et al. (2004). *One-Step Preparation of Porous Silica Spheres from Sodium Silicate Using Triblock Copolymer Templating*. *Chemistry of Materials*.16(21): 4181-4186.
- Lai. C. Y. 2013. *Mesoporous Silica Nanomaterials Applications Catalysis*. *Thermodynamics & Catalysis*.(5) 1.
- Laurent, S., et al. (2008). *Magnetic Iron Oxide Nanoparticles: Synthesis, Stabilization, Vectorization, Physicochemical Characterizations, and Biological Applications*. *Chemical Reviews*. 108(6): 2064-2110.
- Liu, H., Lin, C., Ma, Z., Yu, H., Zhou, S. 2013. *Gold Nanoparticles on Mesoporous SiO<sub>2</sub>-Coated Magnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> spheres: A Magnetically separable Catalyst with Good Thermal Stability*, *Molecules*, (18). 14258-14267.
- Liu, J., Yang, Q., Zhao, X., S., and Zhang, L. 2007. *Pore size control of mesoporous silicas from mixtures of sodium silicate and teos*. *Microporous and Mesoporous Materials*, 106:62.
- Lu, A.-H., et al. (2007). *Magnetic Nanoparticles: Synthesis, Protection, Functionalization, and Application*. *Angewandte Chemie International Edition*
- Ma, Y., et al. (2003). *Large-pore mesoporous silica spheres: synthesis and application in HPLC*. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 229(1-3): 1-8.