

**SINTESIS SILIKA MESOPORI PADA PERMUKAAN
NANOPARTIKEL MAGNET Fe_3O_4 DARI PASIR BESI DAN
SODIUM SILIKAT DENGAN METODE SOL-GEL**

SKRIPSI

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



Oleh:

NADIA RAHMA

15036025/2015

PROGRAM STUDI KIMIA

JURUSAN KIMIA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

UNIVERSITAS NEGERI PADANG

2019

PERSETUJUAN SKRIPSI

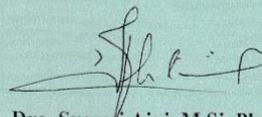
Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel Magnet Fe_3O_4 dari Pasir Besi dan Sodium Silikat dengan Metode Sol-Gel

Nama : Nadia Rahma
NIM : 15036025
Program Studi : Kimia
Jurusan : Kimia
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Padang, Juli 2019

Disetujui oleh :

Dosen Pembimbing



Dra. Svamsi Aini, M.Si, Ph.D
NIP. 19650727 199203 2 010

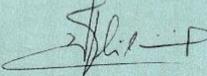
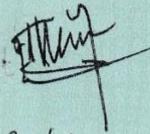
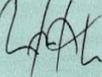
HALAMAN PENGESAHAN LULUS UJIAN SKRIPSI

*Dinyatakan Lulus Setelah dipertahankan di depan Tim Penguji Skripsi
Program Studi Kimia Jurusan Kimia
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Negeri Padang*

Judul : Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel
Magnet Fe₃O₄ dari Pasir Besi dan Sodium Silikat
dengan Metoda Sol-Gel
Nama : Nadia Rahma
TM / NIM : 2015/15036025
Program Studi : Kimia
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Padang, Juli 2019

Tim Penguji

	Nama	Tanda tangan
1. Ketua	: Dra. Syamsi Aini, M.Si, Ph.D	
2. Anggota	: Drs. Bahrizal, M.Si	
3. Anggota	: Umar Kalmar Nizar, M.Si, Ph.D	

SURAT PERNYATAAN

Saya yang bertandatangan dibawah ini :

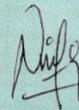
Nama : Nadia Rahma
TM / NIM : 2015/15036025
Tempat/Tanggal lahir : Koto Aur, 10 Juni 1997
Program Studi : Kimia
Jurusan : Kimia
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Alamat : Koto Aur Kec. V Koto Timur, Kab.Padang Pariaman
No. Hp/ Telpon : 085274630158
Judul Skripsi : **Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel Magnet Fe₃O₄ dari Pasir Besi dan Sodium Silikat dengan Metoda Sol-Gel**

Dengan ini menyatakan bahwa :

1. Karya tulis/skripsi ini adalah hasil karya saya dan belum pernah diajukan untuk memperoleh gelar akademik (sarjana) baik di UNP maupun perguruan tinggi lainnya.
2. Karya tulis/skripsi ini murni gagasan, rumusan, dan penelitian saya sendiri tanpa bantuan pihak lain kecuali arahan tim pembimbing.
3. Pada karya tulis/skripsi ini tidak terdapat karya atau pendapat yang telah ditulis atau dipublikasikan orang lain kecuali tertulis dengan jelas dicantumkan pada kepustakaan.
4. Karya tulis/skripsi ini sah apabila telah ditandatangani Asli oleh tim pembimbing dan tim penguji.

Pernyataan ini saya buat dengan sungguh-sungguh dan apabila dikemudian hari terdapat penyimpangan dan ketidakbenaran di dalam pernyataan ini, maka saya bersedia menerima **Sanksi Akademik** berupa pencabutan gelar akademik yang telah diperoleh karena karya tulis/skripsi ini, serta sanksi lainnya sesuai dengan norma yang berlaku di perguruan tinggi

Padang, Juli 2019
Yang Membuat Pernyataan



Nadia Rahma
NIM : 15036025

Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel Fe₃O₄ dari Pasir Besi dan Sodium Silikat dengan Metode Sol-Gel

Nadia Rahma

ABSTRAK

Nanopartikel Fe₃O₄ merupakan salah satu partikel magnetik memiliki karakteristik yang menarik seperti sifat kemagnetan, optis dan katalitiknya, serta banyak digunakan dalam berbagai aplikasi antara lain *drug delivery system (DDS)*, *magnetic resonance imaging (MRI)*, dan *hypertemia therapy system*. Namun, nanopartikel besi tidak stabil bila digunakan langsung sebagai katalis, hingga perlu penstabil seperti silika.

Silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet Fe₃O₄ dilakukan menggunakan campuran nanopartikel Fe₃O₄ dan Fe₂O₃ dari bahan alam pasir besi Sijunjung dan Na₂SiO₃ dari pasir silika Sungai Nyalo dengan metode Sol-Gel. Sintesis dilakukan untuk mengkaji pengaruh pH (7; 9-10; dan 11) dengan massa Na₂SiO₃ 2,51 gram, jumlah massa Na₂SiO₃ (8,78 gram; 10,92 gram; 13,05 gram) dengan pH 12-13, waktu pembentukan gel dan waktu pengendapan campuran nanopartikel Fe₃O₄ dan Fe₂O₃, natrium silikat (Na₂SiO₃) dan surfaktan *Cethyltrimethylammonium bromide (CTAB)* terhadap keberadaan dan ukuran Fe₃O₄-Fe₂O₃@SiO₂.

Senyawa hasil dikarakterisasi menggunakan data XRD. Hasil pengukuran dengan XRD menunjukkan keberadaan silika pada permukaan campuran nanopartikel Fe₃O₄ dan Fe₂O₃ mulai teramati pada kondisi pH 9 dan 11 ditunjukkan dengan adanya puncak lebar dan rendah pada $2\theta = 26$, penambahan Na₂SiO₃ untuk sintesis SiO₂ pada permukaan campuran nanopartikel Fe₃O₄ dan Fe₂O₃ adalah 8,78 gram, yang ditandai dengan puncak 2θ : Fe₃O₄ (42,43); SiO₂ (20,84; 26,41; 59,95) yang paling tinggi dan memiliki daya tarik magnet yang kuat serta pola difraktogram XRD sudut kecil sama dengan pola difraktogram SiO₂ tipe MCM-41 dengan ukuran pori dalam range meso. Sedangkan waktu pembentukan gel dan waktu pengendapan campuran yang paling optimum adalah 4 jam

Kata Kunci Nanopartikel Fe₃O₄, Fe₂O₃ dan Silika Mesopori.

KATA PENGANTAR

Puji dan Syukur ke Hadirat Tuhan Yang Maha Esa karena berkat limpahan Rahmat dan Karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan skripsi yang berjudul **“Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel Magnet Fe₃O₄ dari Pasir Besi dan Sodium Silikat dengan Metode Sol-Gel”**.

Dalam penyusunan skripsi ini, penulis banyak mendapat tantangan dan hambatan akan tetapi dengan bantuan dari berbagai pihak tantangan itu bisa teratasi. Oleh karenanya, penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada semua pihak yang telah membantu dalam penyusunan skripsi ini:

1. Ibu Dra. Syamsi Aini, M.Si, Ph.D sebagai pembimbing dalam penulisan skripsi sekaligus sebagai Penasehat Akademik (PA).
2. Bapak Drs. Bahrizal, M.Si dan Bapak Umar Kalmar Nizar, M.Si, Ph.D sebagai dosen pembahas.
3. Bapak Dr. Mawardi, M.Si selaku Ketua Jurusan Kimia.
4. Bapak Harry Sanjaya, M.Si selaku Ketua Prodi Kimia.
5. Bapak Edi Nasra, M.Si selaku Sekretaris Jurusan Kimia.
6. Kedua Orang Tua penulis, Darwis dan Darmiati yang merupakan motivator terbesar penulis untuk menyelesaikan skripsi ini.
7. Staff Dosen dan Laboran Kimia Universitas Negeri Padang.
8. Teman-teman kimia 2015 yang telah memberikan semangat dan dorongan kepada penulis selama pembuatan skripsi ini.

Semoga bantuannya mendapat balasan yang setimpal dari Tuhan Yang Maha Esa.

Kritik konstruktif dari pembaca sangat penulis harapkan untuk penyempurnaan skripsi ini. Akhir kata semoga skripsi ini dapat memberikan manfaat.

Padang, Juli 2019

Penulis

DAFTAR ISI

ABSTRAK	i
KATA PENGANTAR.....	ii
DAFTAR ISI.....	iii
DAFTAR GAMBAR.....	v
DAFTAR TABEL	vi
DAFTAR LAMPIRAN	vii
BAB I PENDAHULUAN.....	1
A. Latar Belakang	1
B. Rumusan Masalah	4
C. Tujuan Penelitian	5
D. Manfaat Penelitian	6
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	7
A. Nanopartikel Fe ₃ O ₄	7
B. Silika Mesopori	17
C. Natrium Silikat (Na ₂ SiO ₃).....	20
D. Surfaktan	21
E. Metode Sol-Gel	24
F. X-Ray Fluorencence (XRF)	25
G. Difraktometer sinar-X (XRD).....	26
BAB III METODE PENELITIAN	30
A. Waktu dan Tempat Penelitian	30
B. Alat dan Bahan	30

C. Prosedur Penelitian.....	31
D. Karakterisasi Senyawa Hasil.....	34
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	35
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	47
A. Kesimpulan	47
B. Saran	48
DAFTAR PUSTAKA	49
LAMPIRAN	53

DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
1. Serbuk Fe_3O_4 dan Struktur Fe_3O_4	11
2. Spin Magnetik Bahan Ferimagnetik.....	13
3. Struktur Spinel Fe_3O_4	14
4. Struktur Kubik Ferit	15
5. Struktur Heksagonal Fe_3O_4	16
6. Variasi Bentuk Silika Mesopori	17
7. Berbagai Struktur Geometrik Pori	17
8. Struktur Family M41S	17
9. Struktur SBA-15	18
10. Mesopori silika jenis MCM-41	18
11. Skematik Representasi Misel	22
12. CTAB dan N-Dodecylpyridinium Chloride.....	22
13. Sodium-Dodecyl-Sulphonate dan Sodium-Dodecyl-Benzene- Sulphonate.....	23
14. Struktur P123 dan Brij	23
15. Prinsip X-Ray Fluorescence.....	25
16. Diagram Difraksi Bragg	27
17. Pola XRD dari Fe_3O_4	28

18. Pola Difraktogram Sudut Tinggi Sampel $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (pH 7), $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (pH 9) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (pH 11)	36
19. Pola Difraktogram Sudut Tinggi Sampel $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (W 8), $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (W 10) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (W 13)	39
20. Pola Difraktogram Sudut Kecil Sampel $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (W 8)	42
21. Hasil Produk SiO_2 pada Permukaan Nanopartikel Fe_3O_4 (a). $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (T ₄) dan (b). $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (T ₆)	44
22. Pola Difraktogram Sudut Tinggi Sampel $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (T ₄) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ (T ₆)	45

DAFTAR TABEL

Tabel	Halaman
1. Komposisi Unsur Dalam Pasir Besi Sijunjung	26
2. Ukuran Kristal W 8, W 10 dan W 13.....	41
3. Ukuran Partikel W ₈	43

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Sintesis nanopartikel magnet Fe_3O_4	53
2. Sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4 variasi pH	54
3. Sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4 variasi jumlah massa Na_2SiO_3	55
4. Sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4 variasi waktu pembentukan gel dan waktu pengendapan campuran	56
5. Grafik XRD Sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4	57
6. Perhitungan Ukuran Partikel	65

BAB I

PENDAHULUAN

A. Latar Belakang

Pasir besi merupakan pasir dengan presentase Fe dalam bentuk mineral magnetit (Fe_3O_4), hematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) dan maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$) tinggi dan pengotor berupa oksida Ti, Si, Mn, Ca, dan V dengan warna abu-abu kehitaman. Sesuai dengan teori kuantum, logam dan oksida logam dalam ukuran nanometer (<100nm) akan memperlihatkan aktivitasnya sebagai katalis.

Nanopartikel Fe_3O_4 dari pasir besi merupakan salah satu partikel magnetik memiliki karakteristik yang menarik seperti sifat kemagnetan, optis dan katalitiknya, serta banyak digunakan dalam berbagai aplikasi antara lain *drug delivery system (DDS)* (Dobson, 2006), *magnetic resonance imaging (MRI)* (Haw et al., 2010), pemisah logam berat untuk pemurnian air (Lakshmanan, 2013) dan *hypertemia therapy system* (Thiesen and Jordan, 2008). Namun, nanopartikel besi tidak stabil bila digunakan langsung sebagai katalis, hingga perlu penstabil seperti silika, oksida logam, logam mulia, polimer organik dan lain-lain.

Penstabil yang digunakan adalah silika. Silika adalah senyawa hasil polimerisasi asam silikat, yang tersusun dari rantai satuan tetrahedral SiO_4 dengan formula umum SiO_2 . Di alam senyawa silika ditemukan dalam beberapa bahan alam, seperti pasir silika, kuarsa, batu tuff dan sebagainya. Silika sebagai senyawa yang terdapat di alam dapat digunakan sebagai bahan dasar untuk sintesis silika sesuai dengan struktur dan sifat yang diinginkan. Keunggulan silika (SiO_2) yaitu sebagai penghalang interaksi (gaya tarik-menarik) diantara nanopartikel sehingga

lebih mudah terdispersi pada medium cair dan melindungi dari lingkungan asam yang dapat merusak lapisan nanopartikel. Salah satu silika yang dapat digunakan untuk menstabilkan nanopartikel Fe_3O_4 adalah silika mesopori.

Silika mesopori adalah polimer rantai SiO_2 dengan ukuran pori 2-50 nm. Sintesis silika mesopori dapat dilakukan menggunakan bahan dasar sodium silikat atau alkoksida silika (TMOS, TEOS) [Yano, K. And Y. Fukushima (2004), Huo, Q., et al/ (1997)]. TEOS dan TMOS adalah sumber silika relatif mahal dan bila digunakan sebagai sumber silika untuk membentuk mesopori silika akan menghasilkan alkohol sebagai hasil samping (*side product*).

Sementara Na_2SiO_3 merupakan sumber silika yang murah dan apabila digunakan sebagai sumber silika akan menghasilkan ion Na^+ dan anion lainnya dari asam yang diperlukan pada pembentukan asam silika. Adanya ion Na^+ dalam campuran reaksi akan menghalangi gugus Si-OH berinteraksi dengan air, berinteraksi dengan ion Na^+ membentuk gugus Si-O-, selanjutnya akan mempercepat terjadinya polimerisasi silika.

Sintesis silika mesopori telah disintesis oleh Ade dan Putri (2018) dimulai dengan menggunakan sodium silikat yang telah disintesis dari pasir silika daerah oleh Aini, S (2008). Sodium silikat disintesis dari pasir silika menggunakan campuran NaOH dengan penurunan titik lebur Na_2CO_3 , sehingga reaksi pembentukan sodium silikat berlangsung pada temperatur 300°C . Produk silika yang dihasilkan oleh Ade (2018), morfologinya masih belum beraturan dan ukuran partikelnya masih kecil. Sedangkan, silika mesopori dengan bentuk morfologi silika yang terpisah satu sama lain telah berhasil disintesis Putri (2018),

dengan waktu pematangan optimum dan pH campuran optimum adalah 6 jam pada pH 5.

Ada beberapa metode untuk sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$, yaitu metode sol-gel, metode kopresipitasi, metode mikroemulsi, hydrothermal, dan sebagainya. Diantara metode-metode tersebut, dipilih metode sol-gel. Keunggulan dari metode sol-gel adalah proses berlangsung pada suhu rendah, biaya relatif murah, bebas surfaktan dan dapat mengontrol ukuran partikel yang dihasilkan. Adapun cara yang dapat dilakukan untuk melapisi nanopartikel magnet adalah dengan metode 1 tempat (in situ) dan metode impregnasi.

Metode 1 tempat (in situ) merupakan metode sintesis nanopartikel Fe_3O_4 yang diiringi dengan pelapisan nanopartikel Fe_3O_4 dengan silika mesopori di dalam 1 tempat. Sedangkan metode impregnasi merupakan metode pemasukkan nanopartikel Fe_3O_4 ke dalam silika mesopori. Kelemahan dari metode impregnasi adalah terkadang material tidak terendapkan secara seragam pada pori dan endapan logam cenderung teroksidasi dalam larutan (Bartholomew dan Farrauto, 2006).

Penelitian tentang silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ telah menjadi perhatian karena memiliki potensi yang tinggi dan modifikasi permukaan bahan. Penelitian sebelumnya, sintesis dan karakterisasi nanopartikel komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ core-shell telah dilakukan oleh (Gao et al., 2011; Munasir, et al, 2017) sebagai material superparamagnetik. Berdasarkan salah satu hasil x-ray diffraction (XRD) dengan variasi volume TEOS 1 s/d 8 ml

menunjukkan hasil bahwa semakin bertambah volume TEOS yang digunakan maka intensitas dari SiO_2 semakin meningkat. Kemudian, Suryani (2015) juga melakukan penelitian dengan metode kopresipitasi, ukuran partikel nanokomposit Fe_3O_4 dengan penambahan konsentrasi silika 5% sebesar 11,45 nm dan 20% sebesar 12,37 nm. Bahan utama yang digunakan oleh Suryani adalah $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan larutan *sodium silicate solution* (Na_2SiO_3) komersial.

Natrium silikat dari pasir silika memiliki rasio mol $\text{Na}_2\text{O}/\text{SiO}_2$ berbeda dengan Na_2SiO_3 komersial, maka untuk dapat menghasilkan lapisan silika mesopori pada permukaan nanopartikel Fe_3O_4 membutuhkan kondisi reaksi yang berbeda dengan Na_2SiO_3 komersial.

Berdasarkan uraian di atas, maka penulis tertarik untuk mempelajari metode sintesis silika mesopori pada permukaan nanopartikel Fe_3O_4 menghasilkan $\text{Fe}_3\text{O}_4@/\text{SiO}_2$ dengan bahan dasar nanopartikel Fe_3O_4 dari pasir besi dan natrium silikat dari pasir silika. Penelitian ini diberi judul dengan “**Sintesis Silika Mesopori pada Permukaan Nanopartikel Fe_3O_4 dari Pasir Besi dan Natrium Silikat dengan Metode Sol-Gel**”.

B. Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang, maka rumusan masalah dinyatakan sebagai berikut:

1. Bagaimana pengaruh variasi pH (7; 9-10; dan 11) dengan massa Na_2SiO_3 2,51 gram terhadap keberadaan silika mesopori pada permukaan nanopartikel

magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ yang dihasilkan. Sampel diberi label $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (pH 7), $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (pH 9) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (pH 11).

2. Bagaimana pengaruh variasi jumlah massa Na_2SiO_3 (8,78 gram; 10,92 gram; dan 13,05 gram) pada pH 12-13 terhadap keberadaan dan ukuran silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ yang dihasilkan. Sampel diberi label $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (W 8), $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (W 10) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (W 13).
3. Bagaimana pengaruh variasi waktu pembentukan gel (2 jam; 3 jam) dan waktu pengendapan campuran nanopartikel magnet Fe_3O_4 , natrium silikat (Na_2SiO_3) dan surfaktan *Cetyltrimethylammonium bromide* (CTAB) (2 jam; 3 jam) dengan massa Na_2SiO_3 8,78 gram terhadap keberadaan silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ yang dihasilkan. Sampel diberi label $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (T₄) dan $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ (T₆).

C. Tujuan Penelitian

Adapun tujuan penelitian adalah sebagai berikut:

1. Mengetahui pengaruh variasi pH (7; 9-10; dan 11) dengan massa Na_2SiO_3 2,51 gram terhadap keberadaan silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ yang dihasilkan.
2. Mengetahui pengaruh variasi jumlah massa Na_2SiO_3 (8,78 gram; 10,92 gram; dan 13,05 gram) pada pH 12-13 terhadap keberadaan dan ukuran silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3@\text{SiO}_2$ yang dihasilkan.

3. Mengetahui pengaruh variasi waktu pembentukan gel (2 jam; 3 jam) dan waktu pengendapan campuran nanopartikel magnet Fe_3O_4 , natrium silikat (Na_2SiO_3) dan surfaktan *Cethyltrimethylammonium bromide* (CTAB) (2 jam; 3 jam) dengan massa Na_2SiO_3 8,78 gram terhadap keberadaan silika mesopori pada permukaan nanopartikel magnet $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{@SiO}_2$ yang dihasilkan.

D. Manfaat Penelitian

Adapun manfaat yang diharapkan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Memberikan informasi tentang penggunaan Na_2SiO_3 dari pasir silika sebagai bahan untuk penstabil nanopartikel Fe_3O_4 .
2. Nanopartikel magnet yang dilapisi silika $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{@SiO}_2$ hasil sintesis dapat dimodifikasi lebih lanjut dan digunakan sebagai katalis.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

A. Nanopartikel Fe₃O₄

Pasir besi merupakan pasir dengan persentase Fe dalam bentuk mineral magnetit (Fe₃O₄), hematit (α -Fe₂O₃) dan maghemit (γ -Fe₂O₃) tinggi dan pengotor berupa oksida 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. Untuk itu perlu sintesis magnetik (Fe₃O₄) berukuran nanometer. Begitu juga dengan nanopartikel Fe atau oksida Fe memperlihatkan aktivitas katalitik yang tinggi dibanding dengan Fe atau oksida Fe berukuran besar [Rao, et al. 2005].

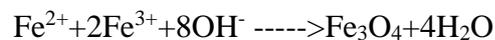
Nanopartikel Fe₃O₄ dari pasir besi dapat disintesis secara fisika dan kimia. Secara fisika yaitu pengilingan energi tinggi (*high-energy milling*). Pada metoda ini pasir besi digerus, kemudian diayak menggunakan ayakan 250 mesh dan kemudian digiling dengan *High Energy Milling-Ellipse 3DMotion* selama 2-6 jam dengan kecepatan 1000 rpm. Sintesis nanopartikel Fe₃O₄ secara fisika ini ekonomis dan menghasilkan produk dalam skala besar, namun, Fe₃O₄ yang dihasilkan dalam bentuk dan ukuran yang tidak sama, kemurnian rendah, serta

nanopartikel besi yang dihasilkan memiliki sifat magnet 25% lebih lemah dari Fe₃O₄ ukuran besar.

Secara kimia ada beberapa metoda yang umum untuk sintesis Fe₃O₄ [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 Fe₃O₄ dari larutan garam Fe dengan penambahan basa untuk pengendapan nanopartikel Fe₃O₄ pada suhu ruang. Ukuran bentuk dan komposisi nanopartikel Fe₃O₄ ditentukan oleh jenis garam yang digunakan (klorida, nitrat atau sulfat), rasio Fe⁺²/Fe⁺³, temperatur reaksi, nilai pH larutan. Pembentukan Fe₃O₄ secara kimia dapat dituliskan sbb.



Pengendapan Fe₃O₄ terjadi pada pH 8-14 dengan rasio Fe⁺²/Fe⁺³/adalah 2 : 1. namun magnetic (Fe₃O₄) yang terbentuk tidak stabil, cenderung teroksidasi membentuk Fe₂O₃ dengan keberadaan oksigen. Karena Fe₂O₃ kurang stabil maka diperlukan pelindung berupa oksida logam, logam, silika atau fosfat yang stabil.

b). Dekomposisi thermal

Metoda dekoposisi 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 Fe₃O₄ 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 ke dua penambahan oksidan pada temperatur tinggi untuk menghasilkan Fe_3O_4 .

c). Mikroemulsi

Metoda 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 magnetik dimulai ketika campuran emulsi dan larutan garam besi dipertahankan dalam suasana basa dengan penambahan *cyclohexylamine*. Secara kimia metoda mikroemulsi sama dengan metoda 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 lainnya 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 lamanya reaksi. Sementara kristalinitas magnetik yang dihasilkan ditentukan oleh laju nukleasi, pertumbuhan biji, dan, kedua laju ini ditentukan oleh temperatur reaksi. Dari beberapa metoda sintesis nanopartikel Fe_3O_4 di atas, metoda co-presipitasi merupakan metoda yang paling sederhana dan ekonomis (temperatur rendah).

Sifat kimia dari nanopartikel besi magnetik (Fe_3O_4) adalah sangat reaktif dengan oksidator atau udara, sementara secara fisika nanopartikel Fe_3O_4 mudah teraglomerasi. Dengan demikian Fe_3O_4 dalam ukuran kecil harus dilindungi dari udara waktu penyimpanan dan penggunaan. Perlindungan/stabilisasi nanopartikel Fe_3O_4 dapat dilakukan dengan beberapa cara sebagai berikut:

a. Perlindungan Monomerik

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

b. Perlindungan menggunakan material anorganik

Senyawa anorganik yang paling 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*, *glukosaminoglikan*, tersulfonasi *stirena-divinylbenzene*, *polietilen glikol* (PEG), polivinil alkohol (PVA), Polaksamer-poloksamer, dan olyoxamines.

d. Perlindungan Fe_3O_4 (PEG), polivinil alkohol (PVA), Polaksamer-poloksamer, dan olyoxamines.

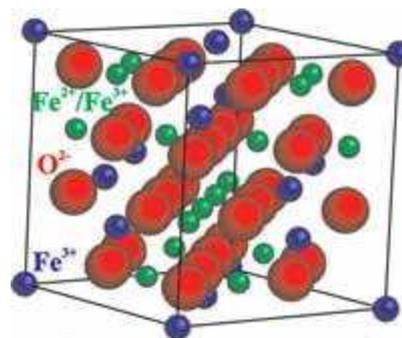
Perlindungan Oksida besi dengan material anorganik seperti silika tidak mengurangi aktivitas katalitik terhadap berbagai reaksi kimia, seperti nanopartikel

Fe_3O_4 dan Fe_2O_3 yang dilapisi silika memiliki aktivitas katalitik untuk; a). konversi gas CO dan 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- Fe_2O_3 dilapisi silika (Liu, H. et al., 2013).

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 seperti Fe_3O_4 (magnetit). 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.



(a).



(b).

Gambar 1. (a). Serbuk Fe_3O_4 , (b). Struktur Fe_3O_4 (Lao et al, 2004).

Dalam beberapa tahun belakangan ini, para peneliti dapat mensintesis partikel nano Fe_3O_4 dengan metode-metode yang berbeda. Seperti metode sol gel yang dikembangkan oleh Xu et al., 2007. Lain lagi dengan dilakukan oleh Iida et

al., 2007 yang memilih mensintesis partikel nano Fe_3O_4 dengan metode hidrolisis terkontrol sedangkan Hong et al., 2007 memilih metode kopresipitasi dalam air. Di antara sekian metode sintesis tersebut, metode kopresipitasi yang paling sederhana karena prosedurnya lebih mudah dilakukan dan memerlukan suhu reaksi yang rendah ($< 100\text{ }^\circ\text{C}$). 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.

Untuk sintesis partikel nano Fe_3O_4 dengan metode kopresipitasi, perbandingan/rasio antara ion ferrous (Fe^{2+}) dan ion ferric (Fe^{3+}) 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 Fe_3O_4 dengan variasi persentase molar ion ferrous terhadap jumlah total ion besinya dalam rentang $\sim 9\text{ nm}$ sampai $\sim 40\text{ nm}$ (Iida et al., 2007).

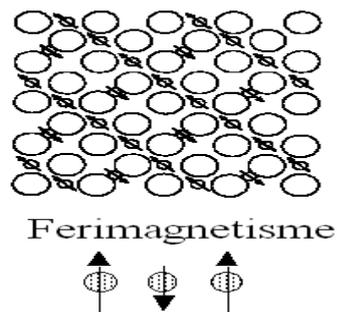
Adapun sifat dari oksida besi adalah sebagai berikut:

- 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 (Fe_2O_3) atau oksida besi juga dikenal sebagai bijih besi (bentuk alfa) atau maghemite (bentuk gamma) dalam bentuk mineral. Sebagai bahan kimia industri ini umumnya disebut *rouge*. Setelah dimurnikan, besi oksida digunakan sebagai lapisan dalam media audio dan komputer. Dalam

lingkungan yang kering atau alkali, besi oksida itu dapat menyebabkan pengvasifan dan menghambat karat, namun juga merupakan komponen utama karat.

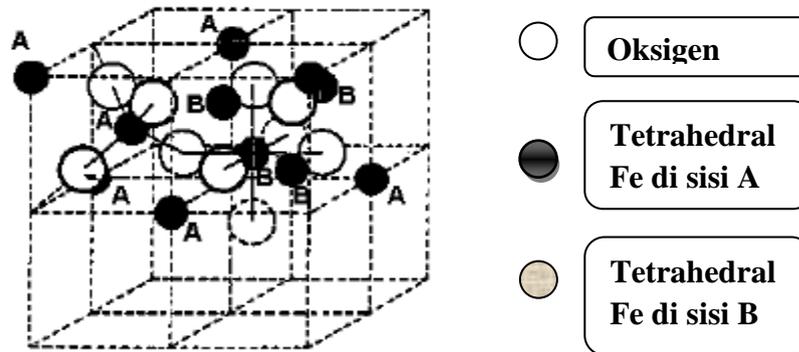
- c). Besi (II, III) oksida (Fe_3O_4) atau besi oksida besi juga dikenal sebagai magnetite atau magnet dalam bentuk mineral (RM Cornell, 2003).

Dalam senyawa ionik, seperti oksida, bentuk-bentuk lebih kompleks magnetik terjadi sebagai akibat dari struktur kristal. Bahan yang sangat bersifat magnetic disebut Ferimagnetik Gambar 2. menunjukkan representasi sederhana spin magnetik dalam oksida ferimagnetik.



Gambar 2. Spin magnetik bahan ferimagnetik (Moskowitz,1991).

Struktur magnetik terdiri dari dua magnetik sublatis (disebut A dan B) yang dipisahkan oleh oksigen. pertukaran Interaksi dimediasi oleh anion oksigen. Ketika ini terjadi, interaksi tersebut disebut interaksi tidak langsung atau *superexchange* (Moskowitz,1991).



Gambar 3. Struktur spinel Fe_3O_4 (Moskowitz,1991).

Kristal magnetik Fe_3O_4 dengan struktur spinel dapat dilihat dari Gambar 3. Struktur tetrahedral: ion Fe dikelilingi oleh empat oksigen. Struktur oktahedral: ion Fe dikelilingi oleh enam ion Oksigen (Moskowitz,1991).

Material ferimagnetik atau biasa disebut ferit adalah bahan magnetik yang mempunyai sifat khas yaitu: keras, rapuh, tahan terhadap panas dan zat kimia, mempunyai tahanan jenis listrik yang tinggi, sehingga banyak digunakan dalam bidang elektronika (Chrismant, J. Rhicard, 1988).

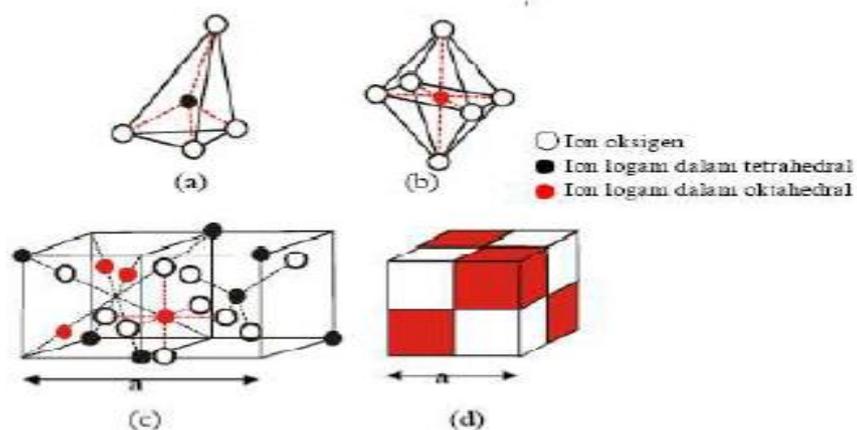
Dalam fasa ferimagnetik terbentuk domain magnetik dan terjadi hysteresis. Ferit merupakan bagian terpenting dari ferimagnetik. Ferit adalah gabungan ion-ion dan memiliki kemampuan magnetic berasal dari magnetic ion yang disebut kation. Berdasarkan struktur kristalnya, ferit digolongkan menjadi 2 kelompok:

1. Kubik

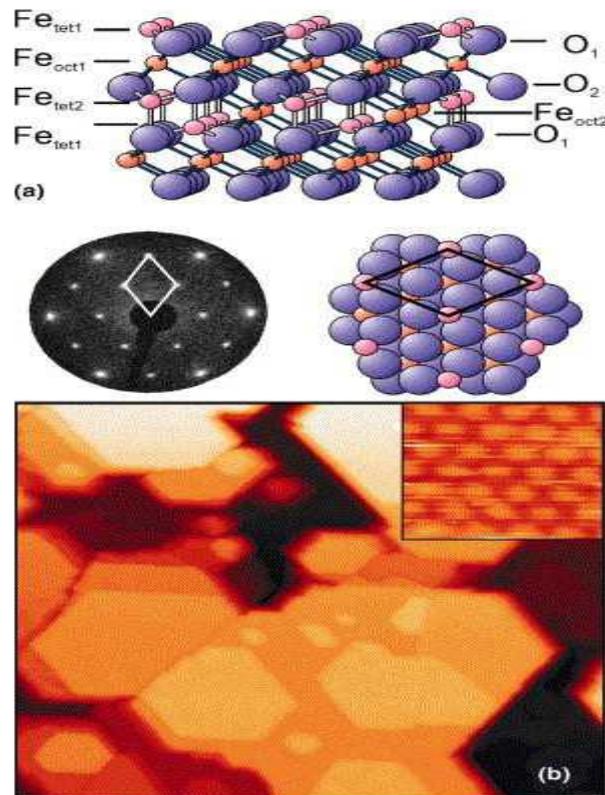
Ferit yang mempunyai rumusan umum $\text{MO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$, dengan M adalah ion logam divalent seperti Mg, Mn, Fe, Ni, Zn, Co dan Cu. Ferit-ferit ini memiliki struktur spinel dan sering disebut ferrospinel karena struktur kristalnya berhubungan erat pada spinel $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$, dengan struktur kompleks dan umumnya magnetik lunak (*soft magnetic*).

2. Heksagonal

Magnetit mempunyai rumus kimia Fe_3O_4 dan mempunyai struktur spinel dengan sel unit kubik yang terdiri dari 32 ion oksigen, di mana celah-celahnya ditempati oleh ion Fe^{2+} dan Fe^{3+} . Delapan ion Fe^{3+} dalam tiap sel berada pada bagian tetrahedral (A), karena berlokasi di tengah sebuah tetrahedron yang keempat sudutnya ditempati ion oksigen (Gambar 4a). sisanya delapan ion Fe^{3+} dan delapan ion Fe^{2+} berada pada bagian oktahedral (B), karena ion-ion oksigen disekitarnya menempati sudut-sudut sebuah oktahedron (Gambar 4b) yang sudut-sudutnya ditempati oleh enam atom oksigen (Hook, J, R & Hall, H, E, 1991). Tiap-tiap unit sel berisi sejumlah ion, di mana secara kompleks sulit dibayangkan. Satu sel terbagi menjadi 8 oktan (kubus spinel), masing-masing berukuran $a/2$ (Gambar 4c), empat oktan yang berarsir memiliki ukuran isi yang sama, begitu pula dengan cara yang sama, tetrahedral di oktan terarsir dan octahedral di oktan tidak terarsir (Cullity, B. D. 1972). Bentuk heksagonal dari Fe_3O_4 dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Struktur kubik ferit (cullity, B. D. 1972), (a). posisi ion logam dalam kristal tetrahedral (A), (b). posisi ion logam dalam octahedral (B), (c). gabungan tetrahedral dan octahedral, (d). kubik magnet.

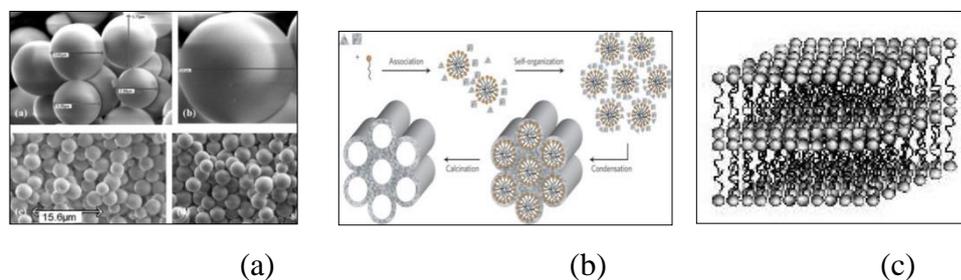


Gambar 5. Struktur heksagonal Fe₃O₄ (Lemire.C, 2004). (a). Gambar sisi samping dan atas Fe₃O₄ (1 1 1). (b). Gambar STM Fe₃O₄(1 1 1) dari film (size 300 × 300 nm²) dengan ukuran atomik sebesar 3 × 3 nm².

Sedangkan, partikel besi berukuran nano dapat digunakan sebagai katalis dan sebagai bahan beberapa industri. Namun nano partikel besi tidak stabil bila digunakan langsung sebagai katalis, hingga perlu penstabil berupa silika mesopori. Silika mesopori disintesis pada permukaan nanopartikel magnet Fe₃O₄ yang dilakukan dengan pembuatan nanopartikel Fe₃O₄ terlebih dahulu. Pada penelitian ini nanopartikel Fe₃O₄ telah berhasil disintesis oleh Aini, S. (2018) menggunakan pasir besi daerah Sijunjung dengan ukuran partikel 19,9 nm.

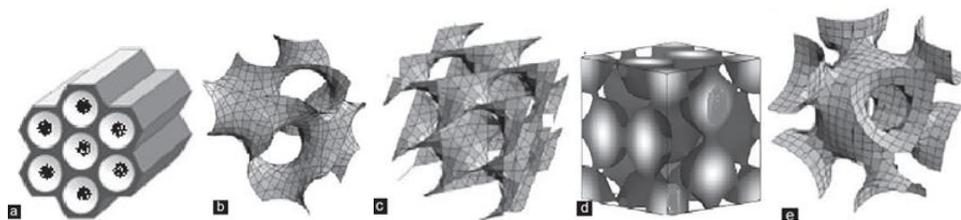
B. Silika Mesopori

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 sferik, silinder, atau lamelar, seperti tampak pada gambar di bawah ini:



Gambar 6. Variasi bentuk silika mesopori: (a). Sferik (b). Silinder (c). Lamelar (Zhao and Wan, 2007).

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 $lm3m$.

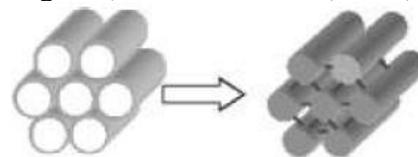


Gambar 7. Berbagai struktur geometrik pori : a). 2D hexagonal $p6mm$, b). kubik bicontinuous $la3d$, c). kubik bikontinuous $pn3m$, d). tipe cage $pm3n$, dan e). tipe cage $lm3m$ (Zhao *et al*, 2015).

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 8. Struktur family M41S, MCM-50 (layer / berlapis), MCM-41 (heksagonal), dan MCM-48 (kubik) (AlOthman, 2012).

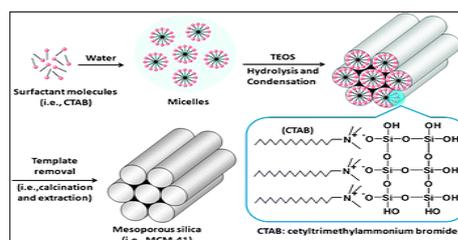


SBA-15

Replika struktur pori

Gambar 9. 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 m²/g, kapasitas penyerapan hidrokarbon 0,7 mL/g atau lebih besar, oleh karenanya banyak digunakan dibidang katalis, filtrasi, dan pemisahan.



Gambar 10. Mesopori silika jenis MCM-41 (Yang, 2014).

Jenis mesopori silika 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 HNO₃ tanpa zat aditif. Penggunaan NO₃⁻ 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. Sperik mono-dispersi dengan kualitas bagus diperoleh dengan laju pengadukan pada rentang 500 – 700 rpm.

Selain M41S dan mesopori silika sperik, 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.

Struktur dan perilaku fasa material mesopori komposit anorganik-organik bergantung pada sifat alami molekul surfaktan dan prekursor silika. Dengan menggunakan tipe surfaktan yang berbeda (kopolimer netral, surfaktan kation, dan surfaktan anion), zat tambahan (trimetil benzene, alkohol, dan garam), suhu

sintesis, dan medium (basa atau asam) yang berbeda, maka berbagai material mesopori dapat disintesis. Selain itu, penyesuaian struktur mesopori dengan morfologi, serat, dan partikel yang berbeda dapat dilakukan dengan mengontrol kondisi dan batasan proses reaksi (Liu, 2007).

C. Natrium Silikat (Na_2SiO_3)

Secara kimia sodium silikat adalah senyawa polimer garam, dibentuk oleh kation basa kuat Na^+ dengan anion asam lemah SiO_4^{4-} , bila dilarutkan dalam air akan menghasilkan larutan basa. Karena sifat larutan yang dihasilkan sangat basa, maka sodium silikat secara ekonomi sangat menguntungkan sebagai bahan tambahan dalam detergen. Dalam larutan asam ion silikat reaktif dengan ion hidrogen membentuk asam silikat, yang bila dipanaskan akan membentuk silika gel.

Asam silikat bila dicampur dengan surfaktan dan ion penyambung, kemudian dipanaskan atau didiamkan akan menyusun diri (berpolimer) pada permukaan surfaktan membentuk jaringan silika. Sementara surfaktan yang berada pada pertengahan jaringan silika hanya bertindak sebagai template/cetakan dan dapat dikeluarkan dengan 2 cara. Cara pengeluaran template dari jaringan silika yang terbentuk yaitu dengan: (a). Ekstraksi pelarut dan (b). Klasinasi. Setelah surfaktan dilepaskan maka terdapat pori pada silika yang ditinggalkan dengan ukuran pori bervariasi mikro, makro dan meso berdasarkan ukuran surfaktan yang digunakan (Kirk and Othmer, 1997).

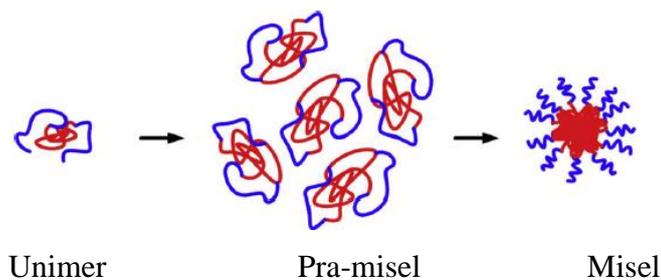
Sodium silikat, dan senyawa turunannya merupakan salah satu senyawa silikon yang memperlihatkan harapan untuk dapat dijadikan sebagai bahan dasar

molecular nanotechnology (MNT) (Gillet,S.L.,1998). Hal ini disebabkan oleh beberapa sifat fisika dan kimianya seperti berikut ini: (1). Silikat stabil dalam udara beroksigen, tidak bisa teroksidasi. (2). Kerangka/ jaringan tiga dimensi dari silikat mempunyai toleransi yang tinggi terhadap panas. Seperti zeolit, diberi nama zeolit dari bahasa Yunani berasal dari kata zeos dan litos yang artinya (Boiling Stone) zat padat yang dapat mendidih/ mengeluarkan molekul air jika dipanaskan. (3). Beberapa dari senyawa silikat inert terhadap beberapa reagent, seperti kuarsa, hanya bereaksi dengan HF dan perubahan pH yang sangat ekstrim. (4). Silikat memiliki tingkat struktur dan komposisi fleksibel, dimana Si dapat digantikan oleh atom terkoordinasi empat lainnya, seperti Al dan B. (5). Polimerisasi jaringan tiga dimensi dari silikat dapat terjadi pada temperatur ruang, bahkan dalam larutan air. (6). Silikat dan silikat tersubstitusi dengan mudah membentuk rangka ukuran molekul dan supermolekul, yang disebut dengan molecular sieves. (7). Terakhir karena kelimpahannya yang tinggi dipermukaan kulit bumi.

D. Surfaktan

Cetakan pengarah partikel mesopori adalah surfaktan, yaitu molekul pengarah dalam pembentukan pori silika. Surfaktan merupakan molekul organik yang memiliki gugus hidrofilik dan hidrofobik. Surfaktan bila dilarutkan dalam air akan membentuk misel (berupa molekul atau ion yang relatif sederhana dan membentuk kerangka yang akan dikelilingi oleh spesies anion anorganik/silikat), dalam pembentukan silika mesopori, spesies silika akan menyusun diri pada

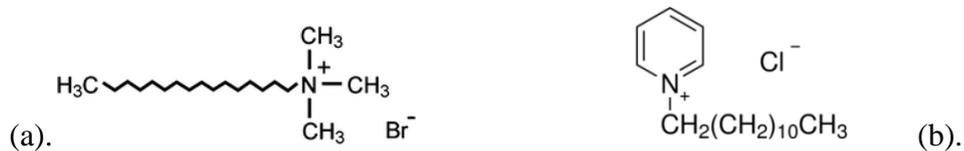
permukaan misel (berpolimer). Misel sebagai template/cetakan pori pada tahap akhir sintesis (silika mesopori) akan dilepaskan dengan pelarutan atau kalsinasi.



Gambar 11. Skematik representasi misel yang nilainya dipengaruhi suhu dari blok co-polymer PEO-PPO-PEO (Jia, 2010).

Ada 3 jenis surfaktan, surfaktan kationik, surfaktan anionik dan surfaktan non-ionik.

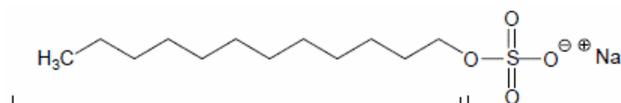
1. Surfaktan kationik, merupakan surfaktan yang memiliki gugus bermuatan positif, sehingga dapat membentuk hubungan langsung dengan anion dari gugus SiO^- dari sumber silika. Contoh surfaktan kationik, Cethyltrimethylammonium bromide (CTAB) dan N-Dodecylpyridinium chloride. Cethyltrimethylammonium bromide (CTAB), surfaktan ini bisa digunakan dalam keadaan asam ataupun basa (Zhao, 2007).



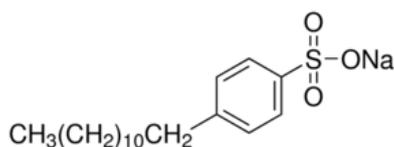
Gambar 12. (a). CTAB dan (b). N-Dodecylpyridinium chloride (Zhao, 2007).

2. Surfaktan Anionik, yaitu surfaktan yang memiliki gugus bermuatan negative, sama dengan gugus silikat SiO^- . Sehingga tidak bisa digunakan sebagai templat

membentuk silika mesopori. Contoh surfaktan anionik, sodium-dodecyl-sulphonate dan sodium-dodecyl-benzene-sulphonate.



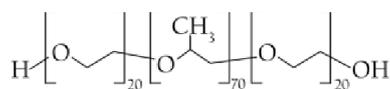
sodium-dodecyl-sulphonate



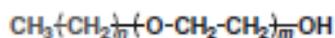
sodium-dodecyl-benzene-sulphonate

Gambar 13. Sodium-dodecyl-sulphonate dan sodium-dodecyl-benzene-sulphonate (Zhao, 2007).

3. Surfaktan Non-ionik, tersedia dengan bermacam struktur kimia, digunakan secara luas dalam bidang industry, harganya murah, tidak beracun dan *biodegradable*. Surfaktan memiliki sifat fasa yang banyak, nilai CMT yang rendah dan sangat disukai untuk mensintesis padatan mesopori. Contoh surfaktan non-ionik: co-polimer poly(ethylene-oxide)_n-poly(propylene-oxide)_m-poly(ethylene-oxide)_n dan Oligomeric alkyl-ethylene-oxide (Brij).



Poly (ethylene - oxide)_n – poly (propylene - oxide)_m – poly (ethylene - oxide)_n

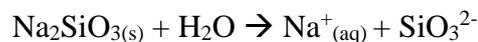


Oligomeric alkyl-ethylene-oxide (Brij)

Gambar 14. Poly (ethylene - oxide)_n – poly (propylene - oxide)_m – poly (ethylene - oxide)_n (johansson, 2008) dan Oligomeric alkyl – ethylene - oxide (Brij) (Zhao,2007).

E. Metode Sol-Gel

Metode sol-gel dipilih karena dapat menghasilkan mesopori silika pada temperatur rendah, dapat mengontrol ukuran mesopori silika yang dihasilkan. Pada prinsipnya metoda sol-gel dimulai dari pembentukan larutan surfaktan dan prekursor, dilanjutkan pembentukan sol, gel, pengendapan dan diakhiri dengan pelepasan surfaktan (ekstraksi, kalsinasi). Proses sol-gel pembentukan sol, gel dan pembentukan padatan berlangsung secara bertahap dengan bantuan garam dan pH larutan pada temperatur rendah (ruang), sehingga ukuran dan morfologi silika mesopori yang dihasilkan lebih homogen (Yu, C., *et al* 2001). Reaksi dasar pelarutan natrium silikat dan hidrolisis silikat membentuk asam silisik sebagai berikut :

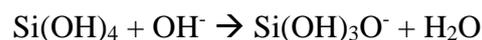


Untuk bisa terjadi polimerisasi silika, maka dengan bantuan katalis asam atau basa akan memprotonasi gugus silanol atau deprotonasi gugus silanol sebagai berikut:

Dalam suasana asam,

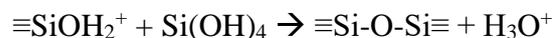


Dalam suasana basa,



Gugus SiO^- dan Si-OH_2^+ yang terbentuk dapat mengalami polimerisasi (kondensasi) sebagai berikut:

Dalam suasana asam,



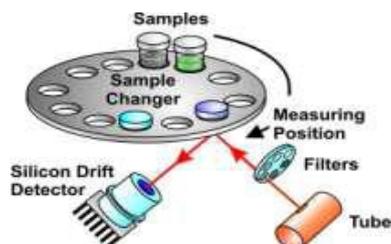
Dalam suasana basa,



Menurut Kosuge, *et al* (2004). Rasio mol reaktan surfaktan P104 : HNO_3 : H_2O : SiO_2 sebesar 0,017 : 5,68 : 1,96 : 1 mol, merupakan kondisi optimum yang ditentukan untuk mensintesis silika mesopori. Pada kondisi pH yang sama ternyata jenis asam akan mempengaruhi agregat bulatan silika mesopori yang dihasilkan. Asam yang lebih hidrofilik akan menghasilkan interaksi yang kuat dengan surfaktan non-ionik, seperti untuk surfaktan P104 dengan asam nitrat (HNO_3) yang lebih hidrofilik dari pada HCl menghasilkan bulatan silika mesopori bukan agregat silika mesopori.

F. X-Ray Fluorescence (XRF)

X-Ray Fluorescence (XRF) merupakan suatu alat yang memanfaatkan sinar-X sebagai sumber energi radiasinya dengan panjang gelombang antara 100 Å sampai 0,1 Å dan memiliki energi yang besar. Alat XRF mempunyai keunggulan analisis yaitu lebih sederhana, preparasi sampelnya tidak rumit hanya dibentuk menjadi pelet ataupun tanpa preparasi, dan waktu yang dipergunakan untuk satu kali pengukuran hanya 300 detik.



Gambar 15. Prinsip X-Ray Fluorescence (Fansuri,H, 2010).

Secara umum prinsip kerja pengukuran XRF adalah sumber cahaya yang dipancarkan dihalangi oleh filter terlebih dahulu sebelum masuk ke dalam kap, kemudian diteruskan masuk ke dalam kap tempat dimana suatu material berada, dalam kap cahaya mendeteksi kandungan mineral yang ada dalam material tersebut. Selanjutnya cahaya keluar dari kap kemudian dihalangi oleh filter dan cahaya masuk ke dalam kolimator kecil dan cahaya diteruskan masuk ke dalam kristal dimana kristal tersebut berfungsi sebagai monokromator (Sudarningsih, 2011). Menurut Sari *et al.*, (2013) hasil *X-Ray Fluorescence* (XRF) dari komposisi unsure dalam pasir besi pantai Pasirian ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Unsur Dalam Pasir Besi Sijunjung (Aini, 2018)

No.	Jenis Unsur	Konsentrasi %
1.	Fe	76,365
2.	Si	5,058
3.	Al	4,503
4.	Ti	8,295
5.	Ca	0,132

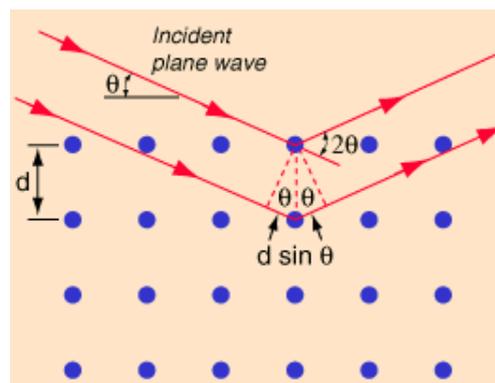
G. Difraktometer sinar-X (XRD)

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 2θ 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 2θ 1-10 dengan pola satu atau dua puncak pada 2θ 1-3 (1, 3/2, 3), diiringi oleh puncak kecil pada 2θ 5-10. Suatu kital 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 (2θ). Hubungan panjang gelombang sinar-X yang datang (λ) pada bidang kristal dengan jarak antar bidang (d) dan sudut difraksi (θ), tingkat difraksi (n), dapat dijelaskan oleh persamaan Bragg di bawah ini.

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

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

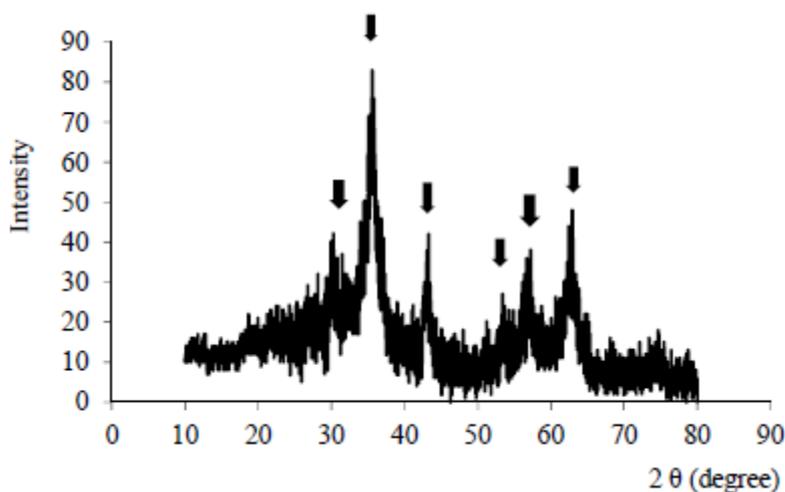


Gambar 16. Diagram difraksi Bragg (Thornton & Rex, 1993).

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 2θ (*diffraction angle*) pada sumbu X versus intensitas pada sumbu Y.



Gambar 17. Pola XRD standar Fe_3O_4 (JCPDS Card No. 19-629).

2θ 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.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

A. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat diambil kesimpulan sebagai berikut:

1. Semakin tinggi pH maka puncak Fe_3O_4 dan SiO_2 semakin jelas karena SiO_2 bisa berpolimer pada suasana basa yaitu $\text{pH} = 12-13$.
2. Jumlah massa Na_2SiO_3 yang paling optimum digunakan untuk sintesis SiO_2 pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4 adalah 8,78 gram dengan pH 12-13 yang menghasilkan puncak-puncak SiO_2 dan Fe_3O_4 lebih banyak, serta puncak Fe_2O_3 sedikit dengan ukuran partikel 22,21 nm.
3. Waktu pembentukan gel dan waktu pengendapan campuran yang paling optimum digunakan untuk sintesis SiO_2 pada permukaan nanopartikel magnet Fe_3O_4 adalah 4 jam dengan 8,78 gram Na_2SiO_3 pada pH 12-13 yang menghasilkan puncak-puncak SiO_2 dan Fe_3O_4 lebih banyak, serta puncak Fe_2O_3 sedikit dengan ukuran partikel 22,21 nm.

B. Saran

Pada penelitian ini didapatkan campuran nanopartikel Fe_3O_4 dengan Fe_2O_3 dalam silika mesopori. Oleh sebab itu, perlu dilakukan penelitian lebih lanjut untuk :

1. Mensintesis nanopartikel Fe_3O_4 dalam bentuk serbuk atau murni.
2. Mengkarakterisasi morfologi nanopartikel Fe_3O_4 dalam silika mesopori menggunakan SEM atau FESEM.
3. Menguji aktivitas katalitik nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{@SiO}_2$ sebagai katalis untuk penguraian zat warna *Azo-Dye*.

DAFTAR PUSTAKA

- Ahangaran, F., Hassanzadeh, A., Nouri, S., 2013. Surface modification of $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{SiO}_2$ microsphere by silane coupling agent. *Int. Nano Lett.* 3, 23. doi:10.1186/2228-5326-3-23.
- Aini, S, dkk. (2018). *Identification and Purification of Nyalo River Silica Sand as Raw Material for the Synthesis of Sodium Silicate*. Institute of Physics vol: 335(1).
- Aji, M. P. (2008). *Kajian Sifat Magnetik Magnetit (Fe_3O_4) Hasil Penumbuhan Dengan Metode Presipitasi Berbahan Dasar Pasir Besi*. Thesis. Institut Teknologi Bandung.
- AlOthman, A. Z. 2012. A Review: Fundamental Aspects of Silicate Mesoporous Materials. *Materials* 2012, 5, 2874-2902; doi: 10.3390/ma5122874.
- Astruc, D. L., & Aranzaes, J. R., 2005. Nanoparticles Recyclable Catalysts: The Frontier between Homogeneous and Heterogeneous Catalysis. *Angew, Chem. Int. Ed.* 44(48): 7852-7872.
- Augustine, R. L. 1996. *Heterogeneous Catalysis for the Synthetic Chemist*. New York: Marcell Dekker. Inc.
- Bartholomew, C. H. dan Farrauto, R. J. 2006. *Fundamentals of Industrial Catalytic Processes; Second Edition*. New Jersey: Jhon Willey and Sons, Inc.
- Chrismant, J. Rhicard (1988). *Fundamental of solid state physics*. John Willey & Sons, Canada, hal: 369-371.
- Cornell, RM, dkk. (2003). *The Iron Oxides: Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses*. Wiley VCH.
- Cullity, B. D. (1972). *Introduction to magnetic materials*. Addison-Wesley Series in metalurgi and materials, University of Notre Dame.
- Dipowardani, B.T. (2008). Sintesis Silika Kristalin Menggunakan Surfaktan Cetiltrimetilamonium Bromide (CTAB) dan Trimetilamonium Klorida (TMACl) sebagai Pencetak Pori. Vol 11, No 1.
- Dobson, J., 2006. Magnetic nanoparticles for drug delivery. *Drug Dev. Res.* 67, 55–60. doi:10.1002/ddr.20067.
- Gao, M., Li, W., Dong, J., Zhang, Z., Yang, B., 2011. Synthesis and Characterization of Superparamagnetic Core-Shell Composite Nanoparticles. *World J. Condens. Matter Phys.* 01, 49–54. doi:10.4236/wjcmp.2011.12008.