

## BAB I PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Persenyawaan terbesar dari karbon yang terdapat di atmosfer bumi merupakan gas karbon dioksida ( $\text{CO}_2$ ). Gas karbon dioksida ( $\text{CO}_2$ ) penting bagi kehidupan terutama untuk fotosintesis tumbuhan yang dihasilkan dari siklus karbon di alam. Konsentrasi gas  $\text{CO}_2$  di atmosfer telah meningkat secara konstan sejak terjadinya revolusi industri yang disebabkan oleh pembakaran bahan bakar fosil dalam jumlah yang besar. Diperkirakan sekitar 496 Gt (giga ton)  $\text{CO}_2$  akan di hasilkan diantara tahun 2010-2060 lewat pembakaran bahan bakar fosil<sup>1</sup>.

Kelompok senyawa karbamat ( $\text{RNHCOOR}'$ ) adalah salah satu produk yang dapat di sintesis melalui konversi  $\text{CO}_2$ . Senyawa karbamat ini merupakan salah satu senyawa yang penting pada obat-obatan, produk insektisida dan industri poliuretan (PU)<sup>2</sup>. Penggunaan katalis untuk mengkonversi  $\text{CO}_2$  menjadi senyawa karbamat merupakan salah satu alternatif dan dapat terjadi pada beberapa rute. Dibandingkan dengan katalis asam-basa dan *molecular sieve*, oksida logam dapat digunakan sebagai katalis karena memiliki kestabilan struktural dan kemampuan deaktivasi yang lebih baik. Dari berbagai jenis oksida logam tersebut,  $\text{CeO}_2$  merupakan salah satu katalis yang menjanjikan pada konversi gas  $\text{CO}_2$  menjadi senyawa asam karbamat<sup>3</sup>. Material  $\text{CeO}_2$  telah dilaporkan memiliki sifat katalitik yang baik disebabkan akan menghasilkan material nonstoikiometri  $\text{CeO}_{2-x}$  melalui siklus redoks yang mudah bolak balik pada ion cerium ( $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$ ), sifat redoks ini seperti yang ditemukan pada sisi aktif asam-basa lewis pada katalis<sup>4</sup>.

Pada sifat katalitik dari  $\text{CeO}_2$  dapat ditingkatkan dengan merubah ukuran  $\text{CeO}_2$  menjadi ukuran dalam skala nano, karena dapat menghasilkan lebih banyak kekosongan oksigen pada permukaan partikel yang memiliki koeksistensi keadaan oksidasi  $\text{Ce}^{3+}$  dan  $\text{Ce}^{4+}$ <sup>5,6</sup>. Senyawa *cerium carbonate* ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ ) telah banyak digunakan sebagai prekursor  $\text{CeO}_2$  selain senyawa cerium nitrat heksahidrat ( $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ), karena sederhananya proses sintesis dan produksinya yang mudah dalam mengatur skala ukuran partikel<sup>7-9</sup>. Selain itu, morfologi khas nano dan mikropartikel yang terdiri dari cerium oksida, seperti partikel shuttle, kupu-kupu, bunga, dan globin<sup>10-12</sup>, dapat dicapai melalui sintesisnya menggunakan cerium karbonat sebagai prekursor, menjadikannya alternatif sintesis untuk meningkatkan sifat fisikokimia dan sifat katalitik yang diinginkan dapat dikendalikan<sup>9</sup>. Cerium karbonat adalah sumber cerium yang tidak larut dalam air yang dapat dengan mudah

diubah menjadi senyawa cerium oksida dengan pemanasan (kalsinasi)<sup>13</sup>.

Penambahan senyawa *capping agent* berupa senyawa polyallylamine hydrochloride (PAH) pada sintesis partikel  $Ce_2(CO_3)_3$  juga telah dilakukan untuk menghasilkan partikel berbentuk kelopak yang lebih terdispersi<sup>14</sup>. Ekstrak daun gambir mengandung metabolit sekunder seperti katekin sebagai komponen utama serta beberapa komponen lain seperti asam kateku tanat, kuersetin, kateku merah, gambir flouresen, lemak dan lilin dapat digunakan sebagai *capping agent* sekaligus sebagai *reducing agent*. Berdasarkan penelitian Arief, S (2015), dijelaskan bahwa senyawa pada ekstrak daun gambir seperti katekin, kateku tanat, dan kuarsetin merupakan senyawa *capping agent* yang mampu mengontrol dan mereduksi partikel perak pada proses pembentukan partikel perak<sup>15</sup>. Senyawa katekin memiliki gugus hidroksil (-OH) yang dapat meng-*capping* partikel logam untuk menghindari pertumbuhan dan proses aglomerasi berlanjut. Melalui proses *capping* ini partikel yang dihasilkan berukuran relatif lebih kecil dan memiliki aktifitas katalitik yang lebih baik<sup>16</sup>.

Pada penelitian ini dilihat pengaruh dari penambahan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* terhadap ukuran partikel, bentuk partikel dan morfologi. Partikel cerium karbonat yang diperoleh pada penelitian ini, dilakukan Analisis struktur kristal dengan menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD), *Scanning Electron Microscope* (SEM) dan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR), dengan fungsi berturut-turut yaitu untuk mendapatkan ukuran dan tingkat kristalinitas, mengetahui bentuk dari partikel yang dihasilkan dan analisis gugus fungsi yang terdapat pada partikel  $Ce_2(CO_3)_3$  dengan penambahan ekstrak daun gambir.

## 1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang di atas, maka dapat dirumuskan suatu permasalahan bahwa :

- a. Bagaimana pengaruh penambahan ekstrak daun gambir (*Uncaria gambir* Roxb) sebagai *capping agent* terhadap ukuran dan morfologi partikel cerium karbonat?
- b. Bagaimana karakteristik partikel cerium karbonat yang disintesis menggunakan daun gambir (*Uncaria gambir* Roxb) sebagai *capping agent*?

## 1.3 Tujuan Penelitian

Dari rumusan masalah tersebut, maka penelitian ini bertujuan untuk :

- a. Mempelajari pengaruh penambahan ekstrak daun gambir (*Uncaria gambir* Roxb) sebagai *capping agent* terhadap ukuran dan morfologi partikel cerium

karbonat.

- b. Mengetahui karakteristik cerium karbonat menggunakan ekstrak daun gambir (*Uncaria gambir* Roxb) sebagai *capping agent*

#### 1.4 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan dapat menjadi senyawa prekursor dalam pembuatan senyawa cerium oksida yang akan digunakan sebagai katalis dan meningkatkan daya katalis dari senyawa cerium oksida.

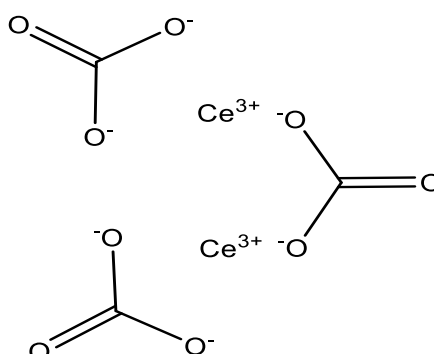


## BAB II TINJAUAN PUSTAKA

### 2.1 Cerium Karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ )

Cerium (simbol atom: Ce, nomor atom: 58) adalah unsur Blok F, Golongan 3, Periode 6 dengan berat atom 140,116. Jumlah elektron pada setiap kulit cerium adalah 2, 8, 18, 19, 9, 2 dan konfigurasi elektronnya adalah  $[\text{Xe}]4f^2 6s^2$ . Model Cerium Bohr Atom cerium memiliki jari-jari 182,5 pm dan jari-jari Van der Waals 235 pm. Dalam bentuk unsurnya, cerium memiliki penampilan putih keperakan. Cerium adalah yang paling melimpah dari logam tanah jarang. Hal ini dicirikan secara kimia dengan memiliki dua keadaan valensi, +3 cerous dan +4 ceric. Karena struktur elektronik 4f, salah satu senyawa cerium yaitu cerium oksida memiliki sifat optik, listrik dan magnet yang baik, yang membuat oksida menjadi bahan fungsional baru<sup>14</sup>. Cerium karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ ) telah banyak diteliti sebagai prekursor cerium oksida, karena sintesisnya yang mudah dan kemudahan produksi yang dapat diskalakan<sup>7-9</sup>. Selain itu, morfologi khas nano dan mikropartikel yang terdiri dari oksida cerium, seperti partikel shuttle, kupu-kupu, bunga, dan globin<sup>10-12</sup>, dapat dicapai melalui sintesisnya menggunakan cerium karbonat sebagai prekursor, menjadikannya alternatif sintetik yang kuat yang meningkatkan sifat fisikokimia dan katalitik yang diinginkan dan dapat dikontrol.

Cerium karbonat adalah sumber cerium yang tidak larut dalam air yang dapat dengan mudah diubah menjadi senyawa cerium lainnya, seperti oksida dengan pemanasan (kalsinasi). Senyawa karbonat juga mengeluarkan karbon dioksida ketika diperlakukan dengan asam encer<sup>13</sup>. Berbagai aplikasi komersial untuk cerium termasuk metalurgi, pemolesan kaca dan kaca, keramik, katalis, dan fosfor. Kemurnian komposisi yang tinggi meningkatkan kualitas dan kegunaan optik sebagai standar ilmiah. Bubuk dan suspensi unsur skala nano, sebagai alternatif yang digunakan dalam membentuk luas permukaan tinggi<sup>17</sup>. Berikut struktur senyawa cerium karbonat pada Gambar 2.1<sup>18</sup> :



Gambar 2. 1. Struktur senyawa cerium karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ )<sup>18</sup>

## 2.2 Daun Gambir (*Uncaria gambir* Roxb)

Tanaman gambir (*Uncaria gambir* Roxb) merupakan tanaman daerah tropis yang termasuk famili Rubiaceae dengan ketinggian sekitar 1,5–2 meter, setengah merambat atau memanjat dengan percabangan memanjang dan mendatar. *Uncaria gambir* Roxb. merupakan salah satu komoditas di Sumatera Barat Indonesia sebagai tanaman industri yang memiliki nilai ekonomi tinggi. Ini telah digunakan untuk waktu yang lama sebagai kayu lapis dan partikel kayu. Selain itu, daunnya telah digunakan sebagai pewarna tekstil dan obat tradisional untuk luka bakar. Juga diolah sebagai teh untuk melancarkan proses pencernaan di lambung dan usus, untuk menyembuhkan sakit kepala, diare, disentri, sakit kulit, dan penyamak kulit. (Secara botanis, tanaman gambir diklasifikasikan sebagai berikut):

Divisi : Spermatophyta  
 Kelas : Angiospermae  
 Sub-Kelas : Monocotyledonae  
 Ordo : Rubiales  
 Famili : Rubiaceae  
 Genus : *Uncaria*  
 Spesies : *Uncaria gambir* Roxb.

Kandungan utama gambir adalah tanin (51%) dan katekin (20-55%). Tanin dan katekin merupakan senyawa kompleks yang termasuk dalam golongan flavonoid alam dengan struktur fenol. Senyawa lain dalam persentase kecil terdiri dari pyrocatecol (20-30%) seperti quersetin (2-4%), katechu merah (3-5%), gambir berfluoresensi (1-3%) fixed oil (1-2%) dan sedikit lilin (1-2%)<sup>19</sup>. Senyawa katekin, kateku tanat dan kuarsetin merupakan senyawa capping agent yang baik terhadap partikel perak dan juga dapat mereduksi partikel Ag<sup>+</sup> menjadi Ag<sup>0</sup><sup>20</sup>.

## 2.3 Sintesis Partikel Cerium Karbonat (Ce<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)

Metode untuk membuat senyawa berbasis cerium karbonat, yang mampu dengan mudah mengontrol struktur kristal, ukuran, bentuk, atau lain-lain dari senyawa berbasis cerium karbonat, dan membuat senyawa berbasis cerium karbonat secara efisien dengan biaya rendah. Metode pembuatan senyawa berbasis cerium karbonat meliputi tahapan mereaksikan Cerium nitrat pada suhu tinggi untuk membentuk cerium oksikarbonat hidrat (Ce<sub>2</sub>O(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·H<sub>2</sub>O) dengan struktur kristal ortorombik, atau cerium hidroksikarbonat (Ce(OH)<sub>2</sub>·(CO<sub>3</sub>)) dengan struktur kristal batang<sup>13</sup>.

Pada penelitian yang telah dilakukan sebelumnya, urea diurai dengan panas untuk membentuk amonia atau garam amoniumnya, dan karbon dioksida atau karbonatnya. Karbon dioksida atau karbonat yang dihasilkan bereaksi dengan garam cerium atau ion cerium yang diturunkan dari garam cerium untuk memperoleh senyawa berbasis cerium karbonat yang dapat digunakan untuk membuat cerium oksida sebagai prekursor<sup>13</sup>. Urea merupakan komponen kimia yang banyak digunakan sebagai presipitasi dan sumber ion karbonat dalam berbagai metode sintetik untuk cerium karbonat, seperti metode presipitasi homogen urea, sintesis hidrotermal, sintesis sonokimia, dan metode microwave-hidrotermal. Urea dapat didekomposisi menjadi ion amonium dan karbonat melalui hidrolisis dan laju dekomposisi urea diatur oleh suhu reaksi<sup>21</sup>.

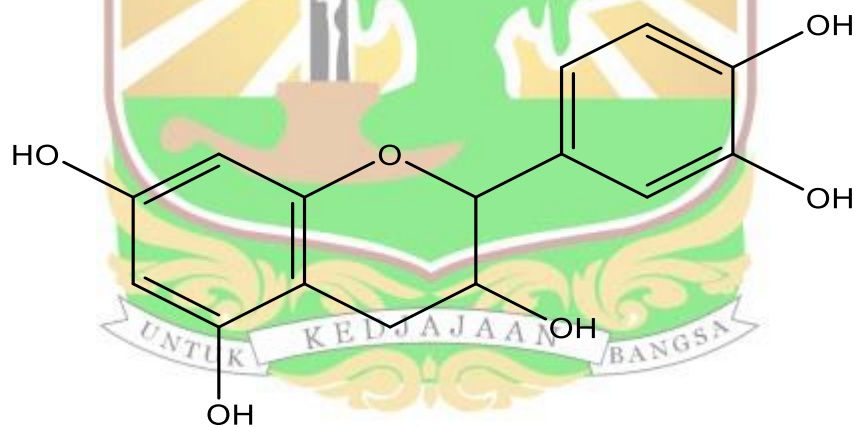
Senyawa lain yang biasa digunakan sebagai presipitan dan sumber ion karbonat yaitu senyawa amonium karbonat. Unsur-unsur tanah jarang membentuk larutan padat karbonat dengan mudah, yang memungkinkan homogenitas kation tinggi dalam prekursor dan suhu pembentukan fase yang digunakan rendah karena senyawa amonium karbonat merupakan presipitan reaktif<sup>22</sup>. Pada studi yang telah dilakukan sebelumnya, senyawa amonium karbonat telah direaksikan dengan cerium nitrat yang menghasilkan senyawa cerium karbonat membentuk bentuk batangan dan ortorombik<sup>23</sup>. Pada penelitian Hu (2018) dilakukan sintesis partikel cerium karbonat dengan mereaksikan cerium nitrat dan amonium karbonat serta dilakukan penambahan *capping agent* untuk mencegah terjadinya agglomerasi pada partikel, sehingga didapatkan partikel cerium karbonat dengan bentuk kelopak<sup>14</sup>.

#### 2.4 *Capping Agent*

Mekanisme suatu sintesis partikel memiliki tahapan pertumbuhan partikel, yaitu inti dari partikel logam yang terbentuk akan mengalami pertumbuhan atau terjadi penumpukan partikel dengan ukuran partikel yang lebih besar. Hal ini terjadi karena adanya gaya tarik menarik antar partikel<sup>24</sup>. Senyawa *capping agent* bisa seperti senyawa karboksilat, polimer, amina rantai panjang, polifinil, pirolidon dan lain sebagainya. Pada umumnya *capping agent* merupakan surfaktan atau struktur yang memiliki satu ujung nonpolar dan satu ujung polar. *Capping agent* juga disebut dengan zat penstabil, yang bekerja meng-*capping* suatu partikel logam bertujuan untuk mengurangi pertumbuhan dan penggumpalan atau fenomena aglomerasi berlanjut<sup>25</sup>.

Dalam beberapa tahun terakhir ini, pada sintesis partikel menggunakan teknik larutan untuk mengontrol ukuran partikel, hal ini menjadi proses yang penting untuk keberhasilan penerapan nanoteknologi. Dalam proses ini digunakan *capping agent* berupa surfaktan atau bahan alam<sup>26</sup>. Tanpa *capping agent*, suatu koloid akan membentuk agregasi partikel, fungsi *capping agent* sendiri digunakan untuk mencegah agregasi partikel, karena lapisan adsorpsi surfaktan pada permukaan partikel. Adsorpsi selektif surfaktan telah dimanipulasi untuk mengontrol arah pertumbuhan nukleasi partikel. Lapisan surfaktan terbentuk selama pertumbuhan partikel dan dapat mengatur kinetika reaksi<sup>27</sup>.

Pada daun gambir terdapat salah satu senyawa yang dapat digunakan sebagai *capping agent* dalam sintesis senyawa partikel cerium karbonat yaitu senyawa golongan fenolik pada senyawa flavonoid karena strukturnya memiliki gugus hidroksil (-OH). Salah satu senyawa flavonoid yaitu katekin, senyawa katekin pada gambir telah digunakan sebagai *capping agent* sebagai pembentukan partikel seperti Ag, Au, dan Cu<sup>15,28</sup>. Struktur dari senyawa katekin ditunjukkan pada Gambar 2.3.



Gambar 2. 2 Struktur Molekul Senyawa Katekin<sup>29</sup>.

## 2.5 Karakterisasi

Karakteristik material hasil penelitian dikarakterisasi menggunakan beberapa teknik karakterisasi, diantaranya adalah XRD, SEM dan FTIR.

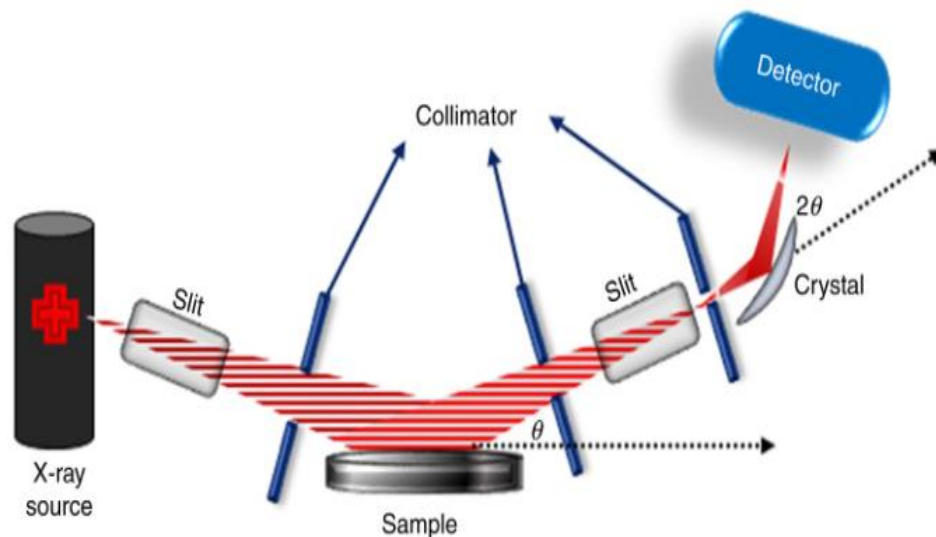
### 2.5.1 X-Ray Diffraction (XRD)

Difraksi sinar-X (XRD) adalah teknik yang digunakan untuk mempelajari struktur yang teratur secara sistem periodik pada skala atom. Panjang gelombang sinar-X berada dalam urutan besarnya yang sama dengan jarak antara bidang kisi dalam bahan kristal. Ketika sinar-X memasuki material, maka akan dihamburkan oleh

awan elektron disekitar atom. Periodisitas bidang kisi menimbulkan interferensi konstruktif dari sinar-X dan intensitas sinar-X yang tersebar diplot terhadap sudut  $2\theta$ . Dari puncak yang diplot, jarak kisi dapat dihitung menggunakan hukum Bragg<sup>30</sup>:

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin\theta$$

Pada dasarnya, instrumen ini mencakup sumber, optik primer, bagian sampel, optik sekunder, dan detektor.



Gambar 2.3 Gambar Ilustrasi X-Ray Diffraction (XRD)<sup>31</sup>.

Keluaran dari alat ini umumnya disebut difraktogram, di mana sumbu y direpresentasikan sebagai intensitas, dan sumbu x diilustrasikan sebagai fungsi sudut pemindaian. Hasil difraktogram memberi kita beberapa informasi tentang: struktur kristal, informasi fase kualitatif, dan simetri grup ruang dari posisi puncak. Di sisi lain, intensitas puncak menyajikan titik simetri dan fraksi fase kuantitatif. Bentuk puncak dan lebar puncak menggambarkan ukuran lite kristal dan kesalahan susun, dan batas antifase. Difraksi sinar-X menggunakan optik sinar-X telah diterapkan pada berbagai jenis aplikasi, termasuk analisis film tipis, evaluasi tekstur sampel, pemantauan fase dan struktur kristal, dan penyelidikan tegangan dan regangan sampel. Dalam sistem penghantaran obat, XRD dapat digunakan untuk karakterisasi komposisi dan struktur fisik (amorf dan/atau kristal) obat-obatan. XRD adalah teknik kunci untuk analisis obat solidstate, menguntungkan semua tahap pengembangan obat, pengujian, dan produksi<sup>31</sup>.

Setelah kalibrasi selesai, lebar setengah tinggi dari tinggi dalam difraktogram bubuk dapat digunakan sebagai ukuran kuantitatif dari ukuran kristal rata-rata sampel. Rumus yang digunakan untuk menghitung ukuran dari kristal adalah rumus



Scherrer seperti pada persamaan<sup>32</sup>:

$$D = \frac{K \times \lambda}{\beta \times \cos\theta}$$

Keterangan: D = Ukuran kristal partikel,

K = Faktor bentuk dari kristal (0,9-1)

$\lambda$  = Panjang gelombang dari pancaran sinar x (1,54056 Å)

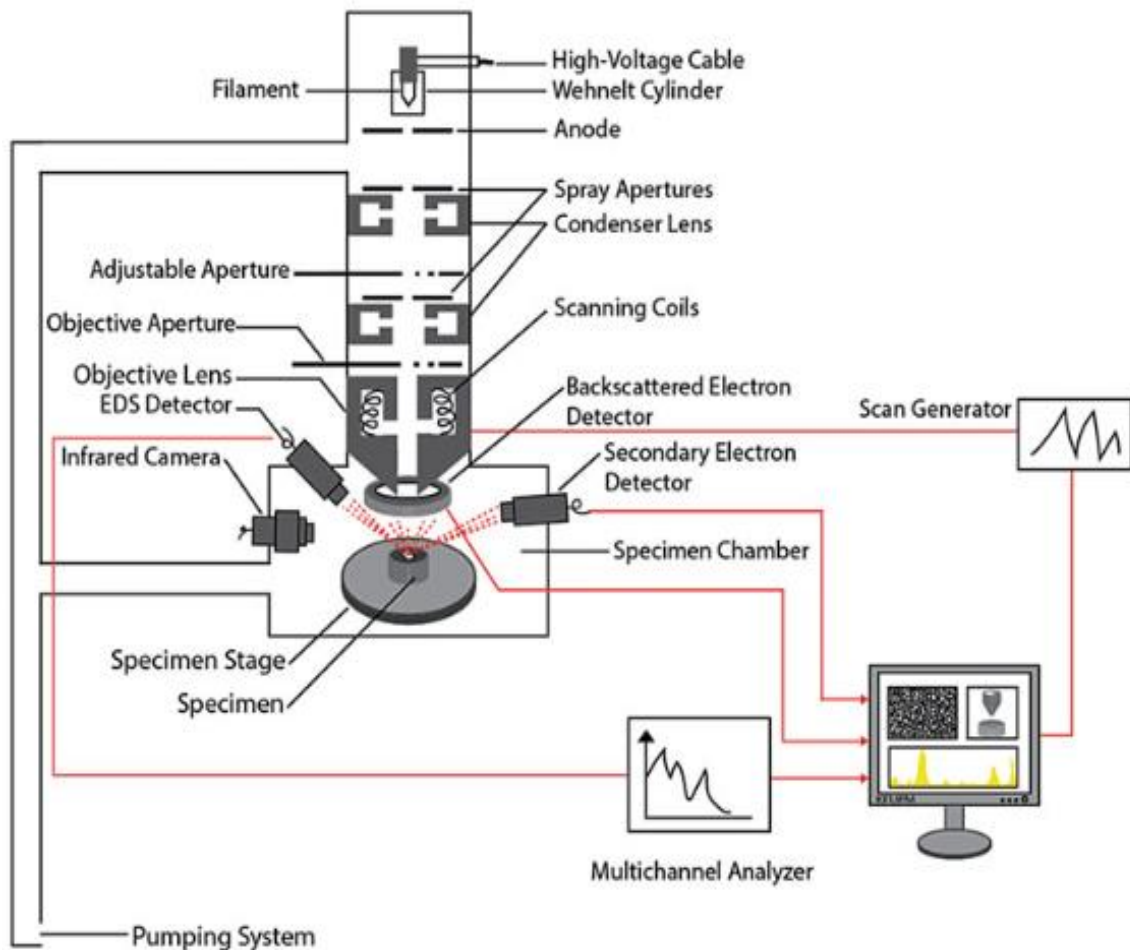
$\beta$  = Nilai dari Full Width at Half Maximum (FWHM) (rad)

$\theta$  = Sudut difraksi (derajat).

### 2.5.2 Scanning Electron Microscopy (SEM)

Scanning Electron Microscopy (SEM) adalah salah satu jenis mikroskop elektron yang menggunakan berkas elektron untuk menggambar profil permukaan suatu benda. Prinsip kerja yang dimiliki SEM adalah menembakkan permukaan benda dengan berkas elektron berenergi tinggi. Permukaan benda ketika dikenai berkas akan memantulkan kembali berkas yang menghasilkan elektron sekunder ke segala arah. Pada satu arah akan menghasilkan pantulan berkas dengan intensitas tinggi. Detektor pada SEM yang berfungsi untuk mendeteksi elektron yang dipantulkan dan menentukan lokasi berkas yang dipantulkan dengan intensitas tertinggi. Profil permukaan akan didapatkan dari informasi arah pantulan seperti landai dan ke mana arah kemiringan<sup>32</sup>.

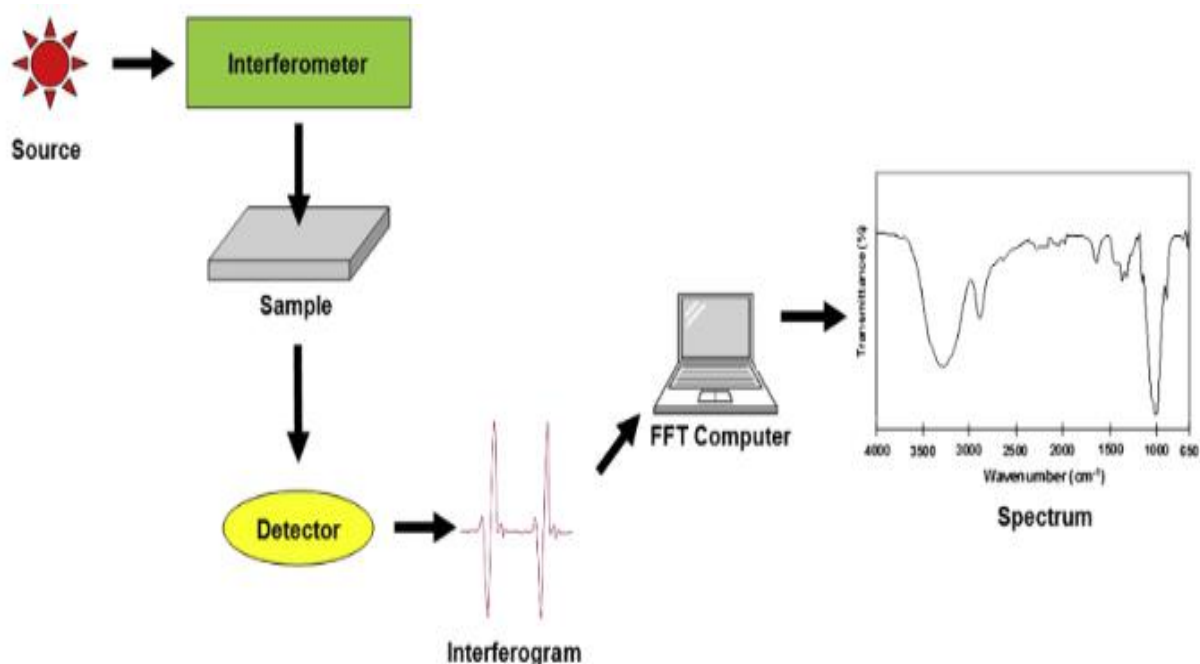
Ketika saat dilakukan pengamatan, permukaan benda yang ditembak di beberapa lokasi dengan berkas elektron di-scan ke seluruh area pengamatan. Lokasi pengamatan dapat dibatasi dengan melakukan zoom in atau zoom out. Berdasarkan arah pantulan berkas pada berbagai titik pengamatan maka profil permukaan pada benda dapat dibangun menggunakan program pengolahan gambar yang ada di dalam komputer. Instrumen SEM modern dapat memperbesar objek hingga satu juta kali ukuran aslinya dan dapat menyelesaikan fitur yang berdimensi lebih kecil dari 1 nm. Demikian pula, interaksi berkas elektron dengan spesimen memancarkan sinar-x dengan energi unik yang dapat menentukan komposisi bahan yang diperiksa. Oleh karena itu, SEM adalah alat yang digunakan untuk karakterisasi bahan yang memberikan informasi tentang permukaan atau struktur dekat permukaan, komposisi dan cacat pada bahan curah<sup>33</sup>. Berikut skema alat SEM pada Gambar 2.5:



Gambar 2.4. Gambar Skema alat Scanning Electron Microscopy (SEM)<sup>33</sup>.

### 2.5.3 *Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)*

*Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)* merupakan spektrokopi vibrasi yang banyak digunakan untuk mengkarakterisasi jenis vibrasi ikatan kimia yang terdapat pada material tertentu. Instrumen FTIR menggunakan prinsip spektroskopi yaitu spektroskopi inframerah yang dilengkapi dengan transformasi fourier untuk mendeteksi dan menganalisis hasil spektrum, Prosedur analisis FTIR suatu material, sampel dikenai kontak dengan radiasi infra merah (IR). Radiasi IR kemudian berdampak pada getaran atom molekul dalam sampel, menghasilkan penyerapan atau transmisi energi tertentu. Hal ini membuat FTIR berguna untuk menentukan getaran molekul spesifik yang terkandung dalam sampel. Spektrum IR dapat menghasilkan data penyerapan berbanding dengan bilangan gelombang atau transmisi berbanding dengan bilangan gelombang<sup>34</sup>. Komponen dasar dalam FTIR ditunjukkan pada Gambar 2.6.



Gambar 2.5. Komponen dasar dalam FTIR<sup>35</sup>

Spektrum inframerah dihasilkan dari transmisi cahaya melewati sampel, pengukuran intensitas cahaya dengan detektor dan dibandingkan dengan intensitas tanpa sampel sebagai fungsi gelombang. Spektrum inframerah menunjukkan intensitas fungsi energi, panjang gelombang ( $\mu\text{m}$ ) atau bilangan gelombang ( $\text{cm}^{-1}$ )<sup>36</sup>. Detektor ditempatkan pada sisi dari senyawa yang akan dilakukan deteksi frekuensi yang dilewatkan pada sampel yang tidak diserap oleh senyawa sehingga banyaknya frekuensi yang dilewatkan senyawa (yang tidak diserap) akan diukur sebagai persen transmittan. Serapan yang sangat tinggi akan memberikan informasi tentang ikatan dalam senyawa yang dihasilkan<sup>34</sup>.

FTIR digunakan untuk menentukan gugus fungsi dalam suatu padatan kristalin yang disintesis, serta mengukur transmittan yang dihasilkan suatu campuran untuk mendapatkan komposisinya. Syarat suatu gugus fungsi dalam suatu senyawa dapat terukur pada spektra IR adalah adanya perbedaan momen dipol pada gugus tersebut. Vibrasi ikatan akan menimbulkan fluktuasi momen dipol yang menghasilkan gelombang listrik. Untuk pengukuran menggunakan IR biasanya berada pada daerah bilangan gelombang  $11\ 400\text{-}4000\ \text{cm}^{-1}$ . Daerah pada bilangan gelombang ini disebut daerah IR sedang dan merupakan daerah optimum untuk penyerapan sinar IR bagi ikatan-ikatan dalam senyawa organik. Selain itu, melalui analisis FTIR jenis ikatan senyawa anorganik dapat dideteksi dari puncak pada daerah fingerprint yakni daerah bilangan gelombang  $600\text{--}1400\ \text{cm}^{-1}$ <sup>37</sup>.

## BAB III METODE PENELITIAN

### 3.1 Tempat dan Waktu Penelitian

Penelitian ini dilakukan selama bulan Februari-Juli 2022 di Laboratorium Material, Departemen Kimia, FMIPA, Universitas Andalas, Padang. Sementara itu, untuk analisis sampel dengan menggunakan SEM dilakukan di Laboratorium Terpadu dan Sentra Inovasi Teknologi, Universitas Lampung, analisis XRD dilakukan di Laboratorium Fisika Material Universitas Negeri Padang dan karakterisasi *Fourier transform infrared* (FTIR) dilakukan di Laboratorium Kimia Universitas Negeri Padang.

### 3.2 Alat dan Bahan

#### 3.2.1 Alat

Alat-alat yang digunakan antara lain, peralatan gelas, termometer, neraca analitik, spatula, *hot plate stirrer*, *magnetic bar*, gerinda, aluminium foil, pipet tetes, pipet takar, corong dan oven. Alat instrumentasi yang digunakan adalah *Scanning Electron Microscopy* (SEM) (SEM, ZEISS EVO/MA 10), *X-Ray Diffraction* (XRD) (Shimadzu XRD-7000S X-Ray Diffractometer), dan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR) (JEOL JSM 6950).

#### 3.2.2 Bahan

Adapun bahan yang digunakan adalah *cerium nitrate hexahydrate* ( $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) (Aldrich),  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  (Merck), akuades, akuabides, ekstrak daun gambir (*Uncaria Gambir Roxb*), etanol, kertas saring Whatman No.42, dan kertas pH universal.

### 3.3 Prosedur Penelitian

#### 3.3.1 Preparasi Ekstrak Daun Gambir (*Uncaria Gambir Roxb*)

Tumbuhan gambir yang digunakan yaitu bagian daun segar. Daun gambir dikeringkan di tempat yang terlindung dari sinar matahari langsung. Daun gambir kering dihaluskan menggunakan grinder. Serbuk yang didapatkan disimpan dalam wadah yang bersih dan terlindung dari cahaya matahari untuk mencegah terjadinya kerusakan dan penurunan mutu sampel. Daun gambir selanjutnya ditambah akuades dengan perbandingan volume 1:10 dan direbus selama  $\pm 2$  jam pada suhu  $60^\circ\text{C}$ . Setelah direbus, larutan disaring dan diambil filtratnya. Ekstrak daun gambir (EDG) dibuat dengan konsentrasi yang berbeda yaitu (1 ; 1,5 ; 2)% v/v. Ekstrak yang didapatkan disimpan dalam wadah yang bersih dan dapat digunakan sebagai *capping agent*. Skema kerja dapat dilihat pada lampiran 1.

#### 3.3.2 Sintesis Partikel Cerium Karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ )

Pada penelitian ini senyawa  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  dilarutkan masing-

masing dalam akuabides pada gelas piala dengan konsentrasi yang sama yaitu  $0,05 \text{ molL}^{-1}$ . Larutan  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  diaduk terus menerus dengan *hot plate stirrer* selama 20 menit pada suhu  $30^\circ\text{C}$  lalu ditambahkan larutan  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  secara perlahan dengan buret ke dalam campuran. Disaring campuran dengan kertas saring *whatman 42* dan endapan yang terbentuk dibiarkan pada suhu ruang selama 1 jam. Setelah itu dicuci produk tiga kali dengan akuades dan satu kali etanol. Dikeringkan endapan dalam pemanas pada suhu  $70^\circ\text{C}$  untuk mendapatkan partikel akhir  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ . Skema kerja dan perhitungan dasar penggunaan bahan dapat dilihat pada lampiran 1 dan lampiran 2.

### **3.3.3 Sintesis Partikel Cerium Karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ ) Dengan Ekstrak Daun Gambir (EDG)**

Pada penelitian ini senyawa  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  dilarutkan masing-masing dalam akuabides pada gelas piala dengan konsentrasi yang sama yaitu  $0,05 \text{ molL}^{-1}$ . Dalam proses sintesis larutan ekstrak daun gambir dengan konsentrasi (1 ; 1,5 ; 2)% v/v pertama-tama ditambahkan ke larutan  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan campuran diaduk terus menerus dengan *hot plate stirrer* selama 20 menit pada suhu  $30^\circ\text{C}$  lalu ditambahkan larutan  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  secara perlahan dengan buret ke dalam campuran. Disaring campuran dengan kertas saring *whatman 42* dan endapan yang terbentuk dibiarkan pada suhu ruang selama 1 jam. Setelah itu dicuci produk tiga kali dengan akuades dan satu kali etanol. Dikeringkan endapan dalam pemanas pada suhu  $70^\circ\text{C}$  untuk mendapatkan partikel akhir  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ .

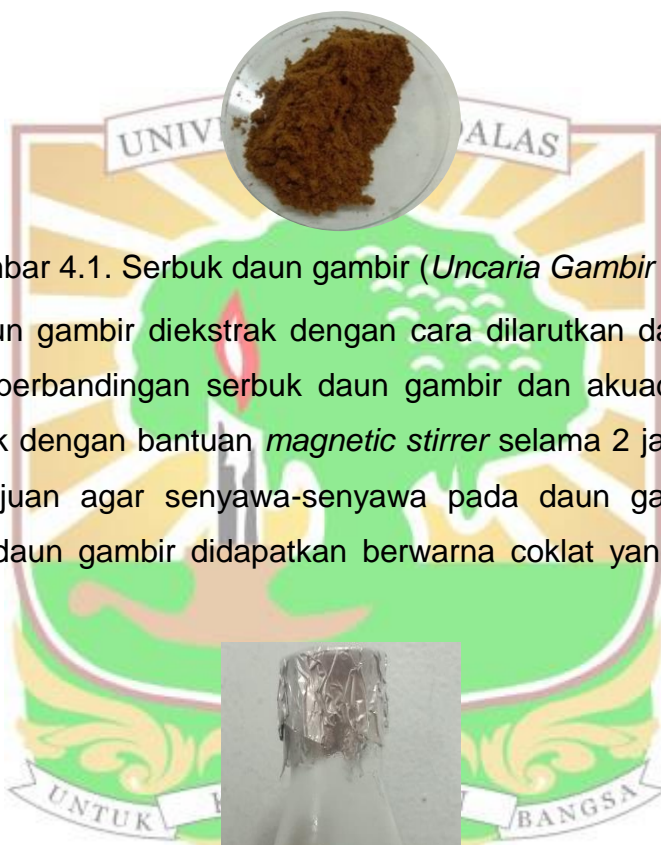
### **3.3.4 Karakterisasi Partikel Cerium Karbonat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ )**

Karakterisasi partikel cerium karbonat dilakukan dengan menggunakan peralatan seperti, *Scanning Electron Microscopy* (SEM), *X-Ray Diffraction* (XRD), dan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR). Karakterisasi SEM digunakan untuk melihat morfologi permukaan dari suatu material. Karakterisasi XRD digunakan untuk mendeteksi dan menganalisis struktur kristal suatu material. Karakterisasi dengan FTIR untuk memperoleh informasi mengenai jenis ikatan atau gugus fungsi.

## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1. Ekstrak Daun Gambir (*Uncaria Gambir Roxb*)

Daun gambir segar diambil dan dikeringkan pada tempat yang tidak terkena cahaya matahari secara langsung agar tidak terjadi kerusakan pada senyawa aktifnya. Daun gambir dihaluskan kemudian disimpan didalam wadah yang bersih, kering dan terlindungi dari cahaya matahari untuk mencegah terjadinya kerusakan dan penurunan mutu<sup>28</sup>. Serbuk daun gambir yang di dapatkan berwarna coklat dan dapat dilihat pada gambar 4.1.



Gambar 4.1. Serbuk daun gambir (*Uncaria Gambir Roxb*)

Ekstrak daun gambir diekstrak dengan cara dilarutkan daun gambir didalam akuades dengan perbandingan serbuk daun gambir dan akuades adalah 1:10<sup>15</sup>. Selanjutnya diaduk dengan bantuan *magnetic stirrer* selama 2 jam pada suhu 60°C. Pemanasan bertujuan agar senyawa-senyawa pada daun gambir dapat tertarik keluar<sup>38</sup>. Ekstrak daun gambir didapatkan berwarna coklat yang dihasilkan seperti pada gambar 4.2.



Gambar 4.2. Ekstrak daun gambir (*Uncaria Gambir Roxb*)

### 4.2. Hasil Sintesis Partikel Cerium Karbonat ( $Ce_2(CO_3)_3$ )

Sintesis partikel cerium karbonat ( $Ce_2(CO_3)_3$ ) telah dilakukan dengan penambahan ekstrak daun gambir (*Uncaria gambir Roxb*) dan tanpa penambahan ekstrak daun gambir. Penambahan ekstrak daun gambir dilakukan untuk melihat pengaruh penambahan EDG terhadap ukuran dan morfologi partikel cerium karbonat. Sintesis

partikel cerium karbonat dilakukan dengan metode presipitasi yang mereaksikan antara cerium nitrat heksahidrat dan amonium karbonat sebagai sumber ion karbonat<sup>39</sup>. Penambahan ekstrak daun gambir pada sintesis berfungsi sebagai *capping agent* yang dapat mengontrol pertumbuhan dan ukuran dari partikel sehingga memberikan ukuran partikel yang lebih kecil serta menghindari pertumbuhan dan penggumpalan atau aglomerasi berlanjut<sup>40</sup>. Ekstrak daun gambir mengandung senyawa turunan polifenol berupa katekin, sehingga ekstrak daun gambir mampu meng*capping* partikel karena banyak mengandung gugus hidroksi (OH)<sup>29</sup>.

Reaksi antara cerium nitrat dengan amonium karbonat dilakukan secara perlahan, tetes pertetes menggunakan buret bertujuan untuk mereaksikan secara sempurna yang disertai terbentuknya endapan<sup>14</sup>. Endapan terbentuk setelah pencampuran larutan cerium nitrat dan amonium karbonat ditandai dengan mulai keruhnya larutan campuran tersebut. Amonium karbonat yang mudah terdekomposisi di dalam pelarut air meningkatkan konsentrasi ion karbonat  $[\text{CO}_3^{2-}]$  yang bereaksi dengan ion  $\text{Ce}^{3+}$  membentuk senyawa cerium karbonat<sup>23</sup>. Penyaringan dilakukan terhadap endapan yang terbentuk untuk memisahkan dengan filtrat menggunakan kertas saring *whatman* 42 untuk menghindari terjadinya aglomerasi pada partikel, sebab penyaringan memiliki pengaruh besar pada morfologi akhir cerium karbonat<sup>14</sup>. Pemanasan pada suhu  $70^\circ\text{C}$  selama 12 jam dilakukan menggunakan oven untuk pembentukan serbuk cerium karbonat<sup>23</sup>. Hasil sintesis cerium karbonat tanpa penambahan EDG berupa serbuk berwarna putih dapat dilihat pada Gambar 4.3 a).

Partikel cerium karbonat yang disintesis dengan penambahan ekstrak daun gambir dapat berfungsi sebagai *capping agent*. Keberadaan *capping agent* dalam reaksi akan mengubah proses kinetika pertumbuhan kristal sehingga dapat mengontrol ukuran partikel cerium karbonat. Penambahan amonium karbonat dilakukan secara tetes demi tetes ke dalam campuran cerium nitrat dan *capping agent*. Senyawa *capping agent* dapat menginisiasi sebuah proses nukleasi pada koloid yang terbentuk. Namun, interaksi antara *capping agent* dan kristal dapat menghambat proses pertumbuhan kristal dan mempertahankan bentuk yang hampir sama serta menyebabkan distribusi yang sempit, karena sifat hidrofilik memungkinkan gugus hidroksil (OH) dari senyawa katekin dan asam kateku tanat menahan migrasi pada permukaan inti<sup>29</sup>. *Capping agent* menutupi permukaan kristal pada posisi tertentu dari kristal yang sedang tumbuh dan menghambat pertumbuhan disekitar permukaan. *Capping agent* menempel pada permukaan tertentu karena ada

gaya elektrostatik antara permukaan inti yang tumbuh dengan senyawa *capping agent*<sup>41</sup>. Hal tersebut dapat dilihat dari hasil sintesis partikel cerium karbonat berupa serbuk dengan variasi konsentrasi ekstrak daun gambir. Perubahan warna serbuk dari putih menjadi putih kekuningan seiring dilakukan penambahan ekstrak daun gambir dengan konsentrasi yang lebih besar, hasil dapat dilihat pada gambar 4.3. Oleh karena itu, hal ini menegaskan bahwa ekstrak daun gambir berperan sebagai *capping agent* dalam sintesis partikel cerium karbonat.



Gambar 4.3 Serbuk  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  hasil sintesis dengan penambahan variasi konsentrasi EDG a) tanpa EDG, b) EDG 1% v/v, c) EDG 1,5% v/v, d) EDG 2% v/v

### 4.3. Karakterisasi Sampel

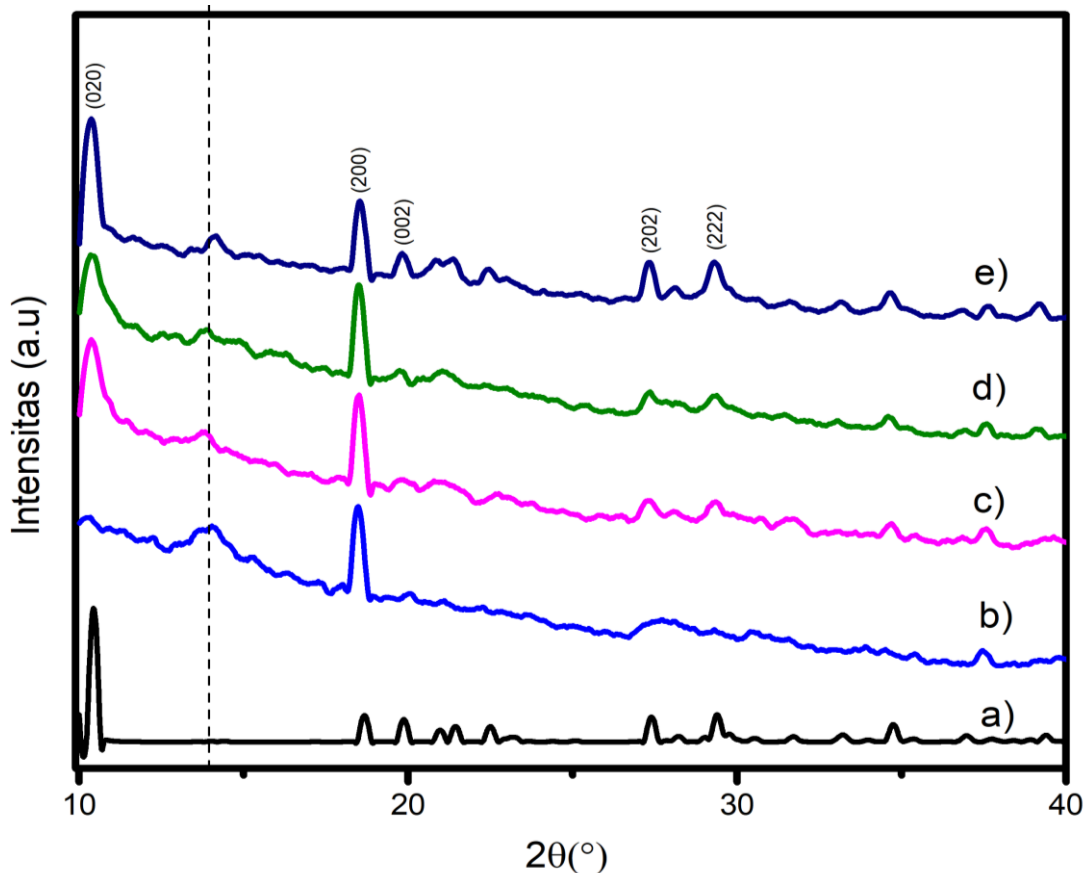
#### 4.3.1 Analisis X-Ray Diffraction (XRD)

Partikel cerium karbonat yang disintesis menggunakan *capping agent* dianalisa dengan instrumen X-Ray Diffraction (XRD) yang bertujuan untuk mengetahui tingkat kristalinitas dan mengetahui ukuran kristal dari material yang telah disintesis. Pola XRD yang dihasilkan dari partikel cerium karbonat dengan penambahan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* yang disintesis menggunakan metoda presipitasi dapat dilihat pada Gambar 4.4. Pola XRD menunjukkan  $2\theta$  pada  $10,44^\circ$ ;  $18,68^\circ$ ;  $19,88^\circ$ ;  $27,38^\circ$ ; dan  $29,48^\circ$  yang terindeks pada bidang (020), (200), (002), (202), dan (222). Pola difraksi tersebut sesuai dengan standar cerium karbonat oktahidrat ( $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ ) dengan sistem kristal ortorombik berdasarkan standar ICSD #100027.

Pada hasil sintesis partikel cerium karbonat disetiap penambahan ekstrak daun gambir dengan variasi konsentrasi semakin besar, ditemukan puncak pengotor yang belum diketahui pada nilai  $2\theta$   $14,05^\circ$ ,  $13,88^\circ$ ,  $13,87^\circ$  dan  $14,11^\circ$ . Partikel cerium karbonat yang disintesis menggunakan ekstrak daun gambir pada bidang (020) didapatkan puncak dengan intensitas lebih tinggi pada penambahan EDG 2% v/v, dapat dilihat pada Gambar 4.4 e). Sedangkan cerium karbonat yang disintesis tanpa menggunakan daun gambir pada bidang (020) tidak memunculkan puncak pola difraksi yang menandakan tidak terbentuknya kristal pada bidang (020), dapat dilihat



pada Gambar 4.4 b). Hal ini dipengaruhi oleh peran gugus hidroksil (OH) dari ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* untuk meningkatkan kristalinitas dan kemurnian partikel cerium karbonat yang disintesis<sup>39</sup>.



Gambar 4.4 Pola difraksi dari: a) data standar  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ , b)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  tanpa EDTG, c)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 + \text{EDTG}$  1%, d)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 + \text{EDTG}$  1,5% dan e)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 + \text{EDTG}$  2%

Pada Gambar 4.4 yang menghasilkan pola difraksi XRD dapat digunakan untuk menghitung ukuran kristal dari partikel cerium karbonat yang telah disintesis. Ukuran kristal dihitung menggunakan persamaan *Schererr*:

$$D = \frac{K \times \lambda}{\beta \times \cos\theta}$$

Keterangan: D = Ukuran kristal partikel,

K = Faktor bentuk dari kristal (0,9-1)

$\lambda$  = Panjang gelombang dari pancaran sinar-X (1,54056 Å)

$\beta$  = Nilai dari Full Width at Half Maximum (FWHM) (rad)

$\theta$  = Sudut difraksi (derajat)<sup>32</sup>

Ukuran kristal dihitung dari puncak pola difraksi pada bidang hkl (200) untuk melihat pengaruh penambahan EDTG pada sintesis partikel cerium karbonat. Berdasarkan perhitungan menggunakan persamaan *Schererr*, partikel cerium

karbonat yang dihasilkan dengan sintesis tanpa penambahan EDG serta penambahan EDG 1% dan 1,5 % v/v memiliki ukuran kristal yang hampir sama yaitu 26 nm. Sedangkan partikel cerium karbonat yang disintesis dengan penambahan EDG 2% v/v memiliki ukuran kristal 19 nm, hasil ini dapat dilihat pada tabel 4.1. Data analisis puncak pola difraksi XRD dari partikel cerium karbonat dan perhitungan ukuran partikel pada setiap puncak pola difraksi dapat dilihat pada lampiran 3.

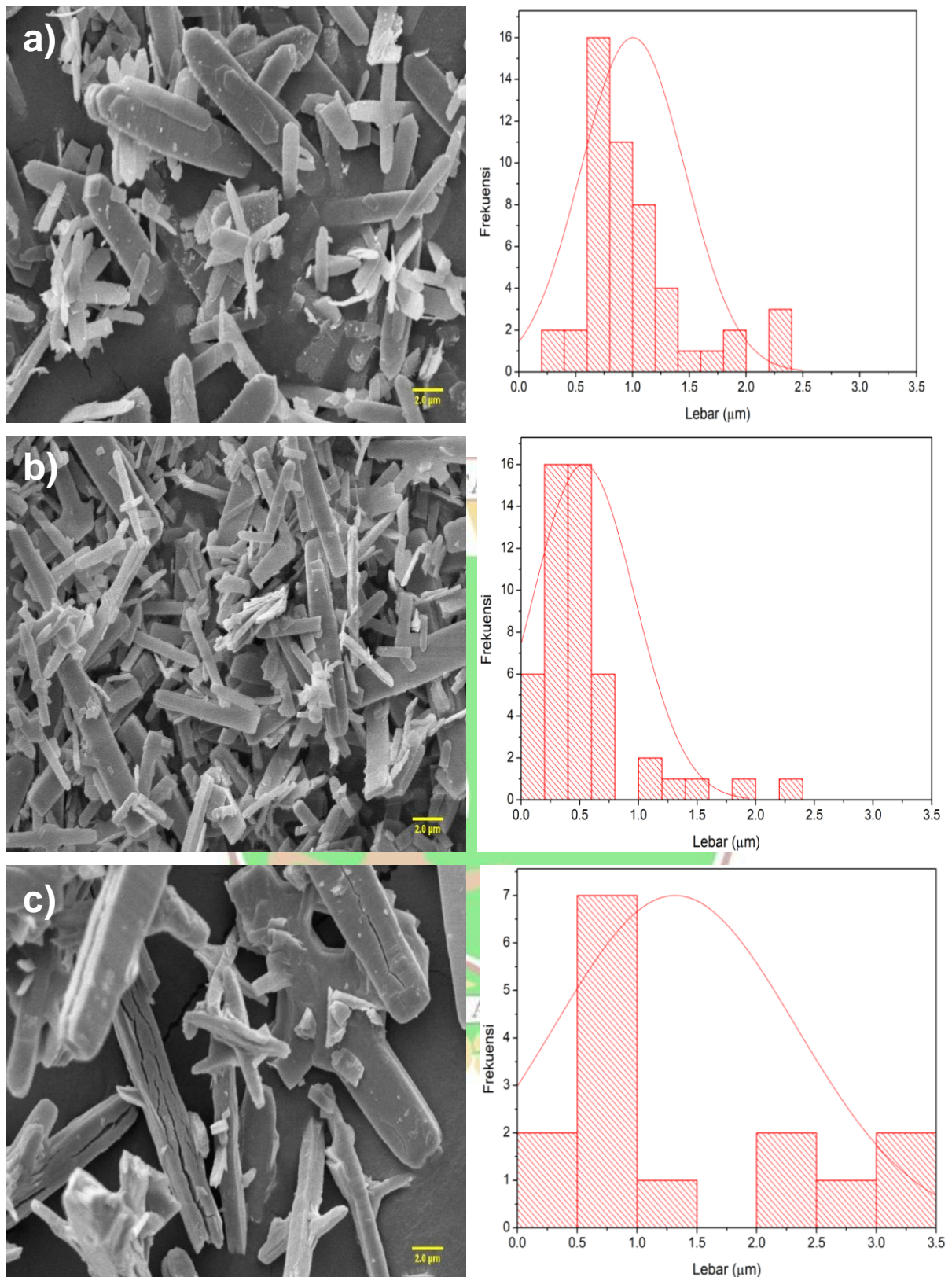
Tabel 4. 1. Ukuran kristal kristal  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$

Sampel	FWHM	$2\theta(^{\circ})$	Ukuran Kristal (nm)
$\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$	0,3070	18,48	26,22
$\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ +EDG 1%	0,3070	18,50	26,22
$\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ +EDG 1,5%	0,3070	18,51	26,22
$\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ +EDG 2%	0.4093	18,5144	19,67

#### 4.3.2 Analisis *Scanning Electron Microscope* (SEM)

Karakterisasi menggunakan *Scanning Elektron Microscope* (SEM) dilakukan untuk mempelajari morfologi dan bentuk dari partikel cerium karbonat yang telah disintesis dengan penambahan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* dan sintesis tanpa penambahan ekstrak daun gambir. Analisis SEM dilakukan pada sampel partikel cerium karbonat tanpa penambahan EDG, penambahan EDG 1% v/v dan penambahan EDG 2% v/v. Pada Gambar 4.5 merupakan hasil foto analisis SEM dan histogram data distribusi ukuran partikel cerium karbonat dengan perbesaran 10.000x.

Berdasarkan hasil analisis SEM pada Gambar 4.5 dapat diamati bahwa partikel cerium karbonat berbentuk batangan dan distribusi ukuran partikel diatas 100 nm yang dinyatakan dalam bentuk histogram pada setiap variasi konsentrasi penambahan EDG. Partikel cerium karbonat yang disintesis tanpa penambahan ekstrak daun gambir dapat diamati bahwasanya partikel yang terbentuk masih ada yang mengalami aglomerasi, dapat dilihat pada Gambar 4.5 a). Sedangkan partikel cerium karbonat yang disintesis dengan penambahan konsentrasi EDG yang berbeda, didapatkan bahwa partikel cerium karbonat berbentuk batangan menjadi lebih seragam dan distribusi ukuran partikel menjadi lebih kecil yang terdapat pada penambahan konsentrasi EDG 1% v/v, hal ini dapat dilihat pada Gambar 4.5 b).



Gambar 4.5. Foto SEM dan distribusi lebar partikel a)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ , b)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 1% v/v, c)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 2% v/v

Pada Gambar 4.5 c) menyajikan foto SEM dan histogram distribusi dari partikel cerium karbonat pada penambahan EDG dengan konsentrasi 2% v/v. Penambahan konsentrasi EDG yang meningkat, maka seharusnya untuk ukuran partikel menjadi lebih kecil disebabkan adanya pengaruh dari EDG sebagai *capping*

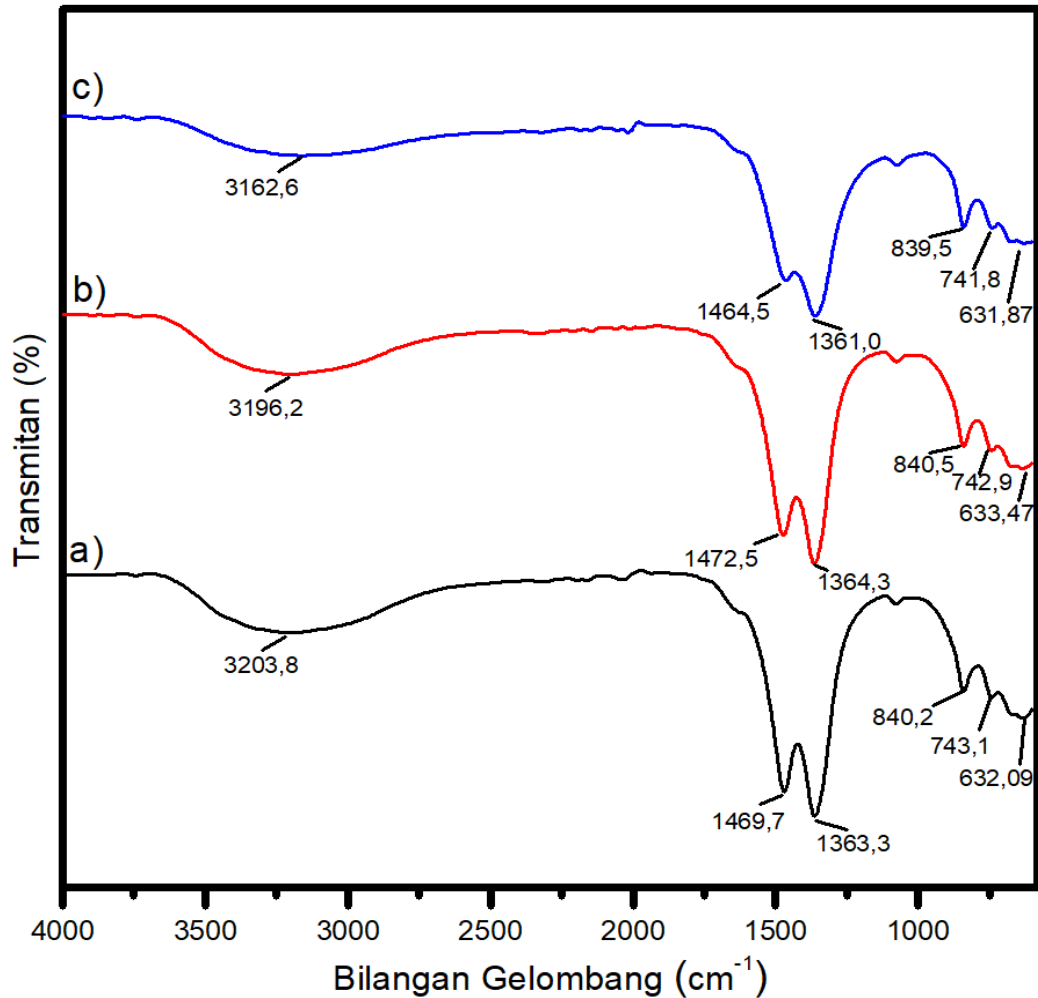
*agent*<sup>14</sup>. Akan tetapi morfologi menjadi rusak dan ukuran partikel menjadi lebih besar, yang terlihat pada Gambar 4.5 c). Hal ini diduga karena semakin meningkatnya konsentrasi EDG pada proses sintesis maka jumlah senyawa EDG menjadi berlebih menyebabkan molekul menjadi besar serta adanya efek sterik yang dapat menghalangi ion karbonat ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) menjadi kompleks. Kereaktifan senyawa-senyawa polifenol pada EDG dipengaruhi oleh jumlah gugus hidroksil yang ada pada molekul senyawa tersebut ketika digunakan sebagai *capping agent*<sup>29</sup>. Maka ada batas optimal digunakannya sebuah senyawa yang berguna sebagai *capping agent* untuk mendapatkan hasil sintesis suatu partikel dengan morfologi yang baik<sup>42</sup>. Berdasarkan penelitian Hu *et.al* (2017), didapatkan hasil partikel cerium karbonat berbentuk kelopak menjadi kecil untuk distribusi ukuran partikelnya dengan meningkatkan konsentrasi surfaktan sebagai *capping agent* dan dispersibilitas mencapai tingkat terbaik saat konsentrasi surfaktan 0,9 g/L. Konsentrasi surfaktan yang ditambahkan diatas 0,9 g/L menjadikan morfologi partikel menjadi rusak dan tidak teratur, hal ini sangat dipengaruhi oleh efek sterik yang menghalangi  $\text{CO}_3^{2-}$  menjadi kompleks<sup>14</sup>.

#### 4.3.3 Analisis *Fourier Transform Infra Red* (FTIR)

Analisis FTIR dilakukan untuk mengidentifikasi gugus fungsi aktif atau interaksi yang terdapat antar atom pada ekstrak daun gambir yang berperan dalam pembentukan partikel cerium karbonat sebagai *capping agent*. Hasil analisis FTIR partikel cerium karbonat dan penambahan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* yang diukur dari bilangan gelombang 400-4000  $\text{cm}^{-1}$  ditunjukkan pada Gambar 4.6.

Pada Gambar 4.6 terlihat adanya serapan pada bilangan gelombang 3203,3  $\text{cm}^{-1}$ , 3196,2  $\text{cm}^{-1}$ , dan 3162,6  $\text{cm}^{-1}$  yang merupakan vibrasi ulur (*stretching*) gugus hidroksil (-OH) dalam air dan senyawa feonik<sup>40,43</sup>. Terdapat pergeseran bilangan gelombang dari 3196,2  $\text{cm}^{-1}$  menjadi 3162,6  $\text{cm}^{-1}$  pada penambahan EDG dengan konsentrasi 1% v/v dan 2% v/v yang menandakan pengikatan gugus hidroksil dengan partikel cerium karbonat<sup>43</sup>. Kemudian pada Gambar 4.6 terdapat serapan ion karbonat pada bilangan gelombang 1469,7  $\text{cm}^{-1}$ , 1472,5  $\text{cm}^{-1}$ , dan 1464,5  $\text{cm}^{-1}$  dikaitkan dengan adanya vibrasi (O-C-O), selanjutnya serapan pada bilangan gelombang 840,2  $\text{cm}^{-1}$ , 840,5  $\text{cm}^{-1}$ , dan 839,5  $\text{cm}^{-1}$  dikaitkan dengan adanya vibrasi ikatan ( $\pi\text{-CO}_3^{2-}$ ) dan serapan pada bilangan gelombang 743,1  $\text{cm}^{-1}$ , 742,9  $\text{cm}^{-1}$ , dan 741,8  $\text{cm}^{-1}$  dikaitkan dengan adanya vibrasi ikatan ( $\sigma\text{-CO}_3^{2-}$ )<sup>21</sup>. Serapan pada bilangan gelombang 1363,3  $\text{cm}^{-1}$ , 1364,3  $\text{cm}^{-1}$ , dan 1361,0  $\text{cm}^{-1}$  dikaitkan dengan adanya (Ce-O-Ce)<sup>44</sup> dan serapan pada bilangan gelombang 632,09  $\text{cm}^{-1}$ , 633,47  $\text{cm}^{-1}$ , dan 631,87  $\text{cm}^{-1}$  dikaitkan dengan adanya vibrasi ikatan (Ce-O)<sup>45</sup>. Pada Gambar

4.6 intensitas transmisi Ce-O yang disintesis dengan penambahan EDG lebih rendah dari pada yang disintesis tanpa EDG, maka hal ini menunjukkan ukuran kristal yang lebih kecil menyerap lebih banyak foton<sup>40</sup>. Hasil ini menegaskan bahwa keberadaan gugus hidroksil (OH) pada senyawa fenolik dari ekstrak daun gambir mampu mencegah pertumbuhan kristal.



Gambar 4.6 Spetrum FTIR partikel a)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  tanpa EDG, b)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 1% v/v, dan c)  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 2%

## BAB V. KESIMPULAN DAN SARAN

### 5.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian, dapat disimpulkan bahwa pada penelitian ini partikel cerium karbonat telah berhasil disintesis menggunakan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* dan menggunakan amonium karbonat sebagai zat presipitasi dengan menggunakan metode presipitasi dengan hasil akhir berupa serbuk berwarna putih sampai putih kekuningan. Hasil analisis dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) menunjukkan bahwa cerium karbonat yang terbentuk adalah ortorombik dengan tingkat kiralinitas yang baik seiring penambahan ekstrak daun gambir yang dilihat dari intensitas tinggi puncak pola difraksi. Didapatkan ukuran kristal menggunakan persamaan *Scherrer* pada hkl (200) berkisar antara 19 nm - 26 nm. Hasil Analisis *Scanning Electron Microscope* (SEM) menunjukkan bahwa partikel cerium karbonat yang dihasilkan berbentuk batangan. Partikel cerium karbonat berbentuk batangan menjadi lebih terdispersi optimal pada penambahan konsentrasi EDG 1% v/v tetapi morfologi menjadi lebih tidak teratur dan rusak yang terlihat pada penambahan EDG dengan konsentrasi 2% v/v. Hasil analisis *Fourier Transform Infra Red* (FTIR) menunjukkan bahwa pita serapan yang dihasilkan dari sintesis partikel cerium karbonat dengan penambahan variasi konsentrasi EDG pada beberapa bilangan gelombang menunjukkan adanya pergeseran serapan gugus hidroksil pada bilangan gelombang 3196,2  $\text{cm}^{-1}$  menjadi 3162,6  $\text{cm}^{-1}$  yang menandakan adanya pengikatan gugus hidroksil dengan partikel cerium karbonat. Kemudian juga muncul serapan cerium berupa vibrasi (Ce-O-Ce) dan vibrasi (Ce-O), serta serapan karbonat berupa vibrasi (O-C-O), vibrasi ikatan ( $\pi\text{-CO}_3^{2-}$ ) dan vibrasi ikatan ( $\sigma\text{-CO}_3^{2-}$ ). Dari hasil sintesis dan karakterisasi didapatkan partikel cerium karbonat dengan morfologi yang baik dan ukuran partikel yang hampir seragam pada partikel cerium karbonat dengan penambahan konsentrasi ekstrak daun gambir sebesar 1% v/v.

### 5.2. Saran

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, dapat dipelajari pengaruh penambahan ekstrak daun gambir sebagai *capping agent* terhadap morfologi dan ukuran partikel yang disintesis dengan metoda presipitasi. Untuk penelitian selanjutnya, sintesis partikel cerium karbonat  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  dapat dilakukan dengan metoda sintesis yang lain, serta menggunakan tanaman dengan variasi yang berbeda sebagai *capping agent*.

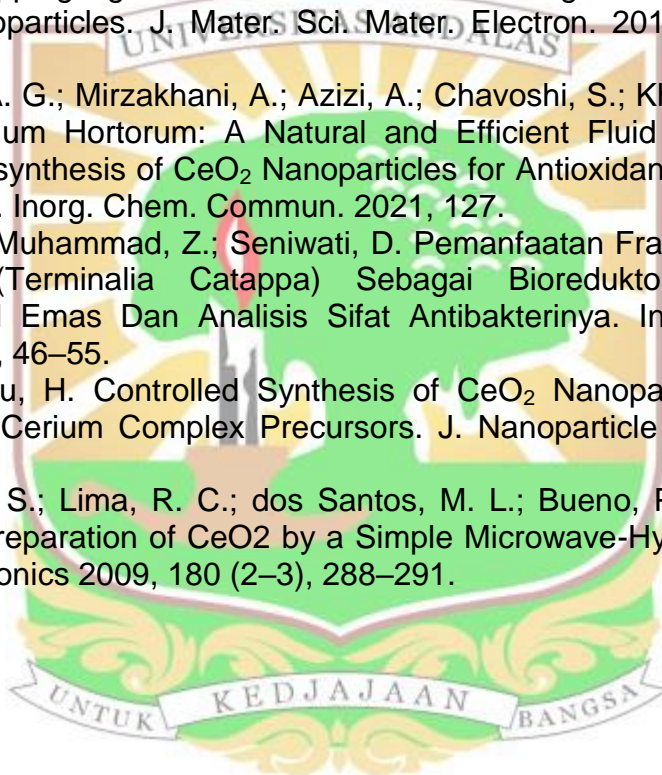
## DAFTAR PUSTAKA

- 1 Kanjilal, B.; Nabavinia, M.; Masoumi, A.; Savelski, M.; Noshadi, I. Challenges on CO<sub>2</sub> Capture, Utilization, and Conversion; Elsevier Inc., 2020.
- 2 Yoshida, M.; Hara, N.; Okuyama, S. Catalytic Production of Urethanes from Amines and Alkyl Halides in Supercritical Carbon Dioxide. 2000, 3, 151–152.
- 3 Tamura, M.; Honda, M.; Nakagawa, Y.; Tomishige, K. Direct Conversion of CO<sub>2</sub> with Diols, Aminoalcohols and Diamines to Cyclic Carbonates, Cyclic Carbamates and Cyclic Ureas Using Heterogeneous Catalysts. *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 2014, 89 (1), 19–33.
- 4 Cao, F.; Zhang, M.; Yang, K.; Tian, Z.; Li, J.; Qu, Y. Single Crystalline CeO<sub>2</sub> Nanotubes. 2020, 12 (3), 2–6.
- 5 Chunwen Sun, H. L. and L. C. Nanostructured Ceria-Based Materials: Synthesis, Properties, and Applications. *Energy Environ. Sci.* 2012, 8475–8505.
- 6 Eric Grulke, Kenneth Reed, Matthew Beck, a Xing Huang, Alastair Cormack, and S. S. Nanoceria: Factors Affecting Its pro and Antioxidant Properties. *Environ. Sci. Nano* 2014.
- 7 Janoš, Pavel Jiří Henych, Jan Pfeifer, Nikola Zemanová, Věra Pilařová, David Milde, Tomáš Opletal, Jakub Tolasz, M. M. and V. Š. Nanocrystalline Cerium Oxide Prepared from a Carbonate Precursor and Its Ability to Breakdown Biologically Relevant Organophosphates†. *Environ. Sci. Nano* 2017.
- 8 Kaczmarek, A. M.; Van Hecke, K.; Van Deun, R. Nano- and Micro-Sized Rare-Earth Carbonates and Their Use as Precursors and Sacrificial Templates for the Synthesis of New Innovative Materials. *Chem. Soc. Rev.* 2015, 44 (8), 2032–2059.
- 9 Nakagawa, K.; Tezuka, Y.; Ohshima, T.; Katayama, M.; Ogata, T.; Sotowa, K. I.; Kato, M.; Sugiyama, S. Formation of Cerium Carbonate Hydroxide and Cerium Oxide Nanostructures by Self-Assembly of Nanoparticles Using Surfactant Template and Their Catalytic Oxidation. *Adv. Powder Technol.* 2016, 27 (5), 2128–2135.
- 10 Sun, C.; Sun, J.; Xiao, G.; Zhang, H.; Qiu, X.; Li, H.; Chen, L. Mesoscale Organization of Nearly Monodisperse Flowerlike Ceria Microspheres. *J. Phys. Chem. B* 2006, 110 (27), 13445–13452.
- 11 Han, Z. H.; Guo, N.; Tang, K. B.; Yu, S. H.; Zhao, H. Q.; Qian, Y. T. Hydrothermal Crystal Growth and Characterization of Cerium Hydroxycarbonates. *J. Cryst. Growth* 2000, 219 (3), 315–318.
- 12 He, Y.; Liang, X.; Chen, B. Globin-like Mesoporous CeO<sub>2</sub>: A CO-Assisted Synthesis Based on Carbonate Hydroxide Precursors and Its Applications in Low Temperature CO Oxidation. *Nano Res.* 2015, 8 (4), 1269–1278.
- 13 •CHO, S.-B. D. 305-340 (KR); •CHOI, S.-S. D. 305-810 (KR); •CHO, J.-Y. D. 305-340 (KR); (74). Method For Preparing a Cerium Carbonate Compound, Method For Preparing Cerium Oxide, And Crystalline Cerium Oxide, 2012.
- 14 Hu, Y. H.; Xu, L.; Li, M.; Wang, X. F.; Liu, Z. G.; Wang, M. T.; Zhang, X. W. Agglomeration Behavior of Petal-Shaped Cerium Carbonate with Different Operating Conditions. *Rare Met.* 2018, 37 (2), 154–160..
- 15 Arief, S.; Gustia, V.; Vanda, D.; Ban, T. Hydrothermal Synthesized Ag Nanoparticles Using Bioreductor of Gambier Leaf Extract (*Uncaria Gambier Roxb*). *J. Chem. Pharm. Res.* 2015, 7 (0), 189–192.
- 16 Phan, C. M.; Nguyen, H. M. Role of Capping Agent in Wet Synthesis of Nanoparticles. *J. Phys. Chem. A* 2017, 121, 3213–3219.
- 17 Zielony, E.; Wiktorczyk, T.; Bieganski, P. Preparation and Optical Characterization

- of E-Beam Deposited Cerium Oxide Films. *Opt. Mater. (Amst)*. 2012, 34, 2101–2107.
- 18 Information, N. C. for B. Cerium(III) carbonate. [https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/Cerium\\_III\\_carbonate](https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/Cerium_III_carbonate).
- 19 Sabarni. Teknik Pembuatan Gambir (*Uncaria Gambir Roxb*) Secara Tradisional. *J. Islam. Sci. Technol.* 2015, 1 (1), 105–112.
- 20 Arief Syukri, Putri Hidayani, Lusi Aferta, Zulhadjri, T. B. and Y. O. Green Chemistry Formation of Stable Ag Nanoparticles (AgNPs) In Isopropanol Solvent. *Orient. J. Chem.* 2017, 33(1), 87–91.
- 21 Choi, S. W.; Kim, J. Facile Room-Temperature Synthesis of Cerium Carbonate and Cerium Oxide Nano- And Microparticles Using 1,1'-Carbonyldiimidazole and Imidazole in a Nonaqueous Solvent. *ACS Omega* 2021, 6 (40), 26477–26488.
- 22 Wang, Y.; Mori, T.; Li, J. G.; Ikegami, T. Low-Temperature Synthesis of Praseodymium-Doped Ceria Nanopowders. *J. Am. Ceram. Soc.* 2002, 85 (12), 3105–3107.
- 23 Cho, M.; Roh, K.; Park, S.; Choi, H.; Lee, J. Control of Particle Size and Shape of Precursors for Ceria Using Ammonium Carbonate as a Precipitant. *Mater. Lett.* 2010, 64 (3), 323–326.
- 24 Mittal, A. K.; Chisti, Y.; Banerjee, U. C. Synthesis of Metallic Nanoparticles Using Plant Extracts. *Biotechnol. Adv.* 2013.
- 25 Kuppusamy, P.; Yusoff, M. M.; Maniam, G. P.; Govindan, N. Biosynthesis of Metallic Nanoparticles Using Plant Derivatives and Their New Avenues in Pharmacological Applications – An Updated Report. *Saudi Pharm. J.* 2016, 24 (4), 473–484.
- 26 Memar, A.; Phan, C. M.; Tade, M. O. Influence of Surfactants on Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nanostructure Photoanode. *Int. J. Hydrogen Energy* 2012, 37 (22), 16835–16843.
- 27 Yin, Y.; Alivisatos, A. P. Colloidal Nanocrystal Synthesis and the Organic-Inorganic Interface. *Nature* 2005, 437 (7059), 664–670.
- 28 Arief, S.; Nasution, F. W.; Zulhadjri; Labanni, A. High Antibacterial Properties of Green Synthesized Gold Nanoparticles Using *Uncaria Gambir Roxb*. Leaf Extract and Triethanolamine. *J. Appl. Pharm. Sci.* 2020, 10 (8), 124–130.
- 29 Syukri Arief, Emriadi, dan H. A. S. Kajian Teoritis Kemampuan Capping Katekin, Kateku Tanat Dan Quarsetin Terhadap Nanaopartikel Perak Dengan Memnggunakan Metoda DFT-B. *J. Kim. Ris.* 2015, 9 (1), 27–33.
- 30 Pednekar, P. P.; Godiyal, S. C.; Jadhav, K. R.; Kadam, V. J. Mesoporous Silica Nanoparticles: A Promising Multifunctional Drug Delivery System; Elsevier Inc., 2017.
- 31 Gumustas, M.; Sengel-turk, C. T.; Gumustas, A. Effect of Polymer-Based Nanoparticles on the Assay of Antimicrobial Drug Delivery Systems; Elsevier Inc., 2017.
- 32 Meiriska, W.; Dian, H. Review: Karakterisasi Nanomaterial Mikrajuddin. *J. Nanosains dan Teknol.* 2009, 2(1).
- 33 Ul-hamid, A. A Beginners' Guide to Scanning Electron Microscopy; 2018.
- 34 Nandiyanto, A. B. D.; Oktiani, R.; Ragadhita, R. How to Read and Interpret Ftir Spectroscopy of Organic Material. *Indones. J. Sci. Technol.* 2019, 4 (1), 97–118.
- 35 Mohamed, M. A.; Jaafar, J.; Ismail, A. F.; Othman, M. H. D.; Rahman, M. A. Fourier Transform Infrared (FTIR) Spectroscopy; Elsevier B.V., 2017.
- 36 Setiabudi, A.; Hardian, R.; Muzakir, A. Karakterisasi Material: Prinsip Dan Aplikasinya Dalam Penelitian Kimia; 2012; Vol. 1.



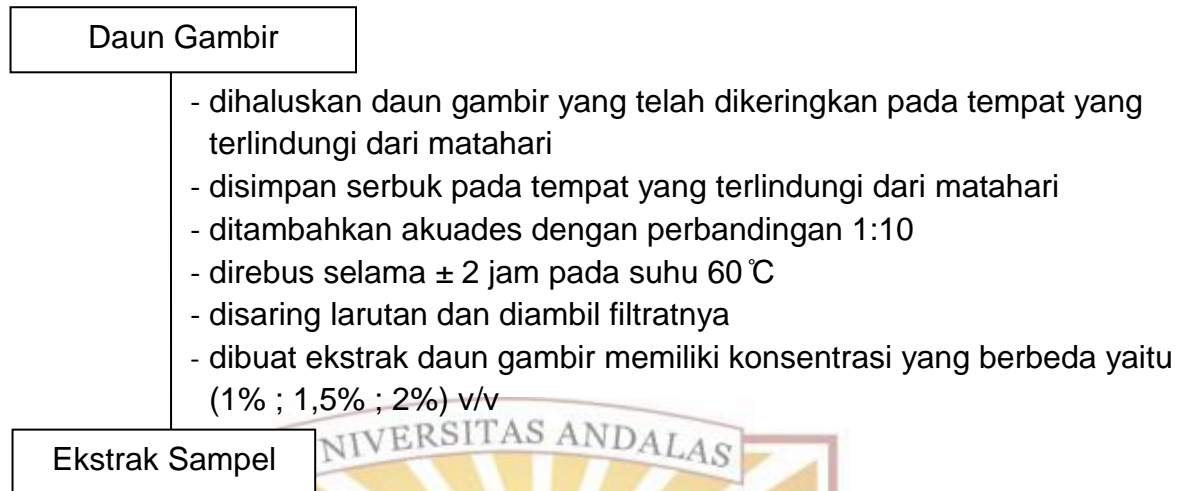
- 37 Silviah, S.; S, C.; Masruroh. Penggunaan Metode FT-IR Untuk Mengidentifikasi Gugus Fungsi Pada Proses Pembaluran Penderita Mioma. *Pharm. Res.* 2019, No. 0274, 1–9.
- 38 Labanni, A.; Zulhadjri, Z.; Handayani, D.; Ohya, Y.; Arief, S. The Effect of Monoethanolamine as Stabilizing Agent in Uncaria Gambir Roxb. Mediated Synthesis of Silver Nanoparticles and Its Antibacterial Activity. *J. Dispers. Sci. Technol.* 2020, 41 (10), 1480–1487.
- 39 Eka Putri, G.; Rilda, Y.; Syukri, S.; Labanni, A.; Arief, S. Highly Antimicrobial Activity of Cerium Oxide Nanoparticles Synthesized Using Moringa Oleifera Leaf Extract by a Rapid Green Precipitation Method. *J. Mater. Res. Technol.* 2021, 15, 2355–2364.
- 40 Handani, S.; Emriadi; Dahlan, D.; Arief, S. Enhanced Structural, Optical and Morphological Properties of ZnO Thin Film Using Green Chemical Approach. *Vacuum* 2020, 179.
- 41 Prabhakaran, T.; Mangalaraja, R. V.; Denardin, J. C.; Varaprasad, K. The Effect of Capping Agents on the Structural and Magnetic Properties of Cobalt Ferrite Nanoparticles. *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* 2018, 29 (14), 11774–11782.
- 42 Mahabadi, A. G.; Mirzakhani, A.; Azizi, A.; Chavoshi, S.; Khaghani, S. Extracts of Pelargonium Hortorum: A Natural and Efficient Fluid for Fast and Eco-Friendly Biosynthesis of CeO<sub>2</sub> Nanoparticles for Antioxidant and Photocatalytic Applications. *Inorg. Chem. Commun.* 2021, 127.
- 43 Nursyamsi; Muhammad, Z.; Seniwati, D. Pemanfaatan Fraksi Etil Asetat Daun Ketapang (*Terminalia Catappa*) Sebagai Bioreduktor Dalam Sintesis Nanopartikel Emas Dan Analisis Sifat Antibakterinya. *Indones. Chim. Acta* 2015, 8 (20), 46–55.
- 44 Yan, B.; Zhu, H. Controlled Synthesis of CeO<sub>2</sub> Nanoparticles Using Novel Amphiphilic Cerium Complex Precursors. *J. Nanoparticle Res.* 2008, 10 (8), 1279–1285.
- 45 Riccardi, C. S.; Lima, R. C.; dos Santos, M. L.; Bueno, P. R.; Varela, J. A.; Longo, E. Preparation of CeO<sub>2</sub> by a Simple Microwave-Hydrothermal Method. *Solid State Ionics* 2009, 180 (2–3), 288–291.



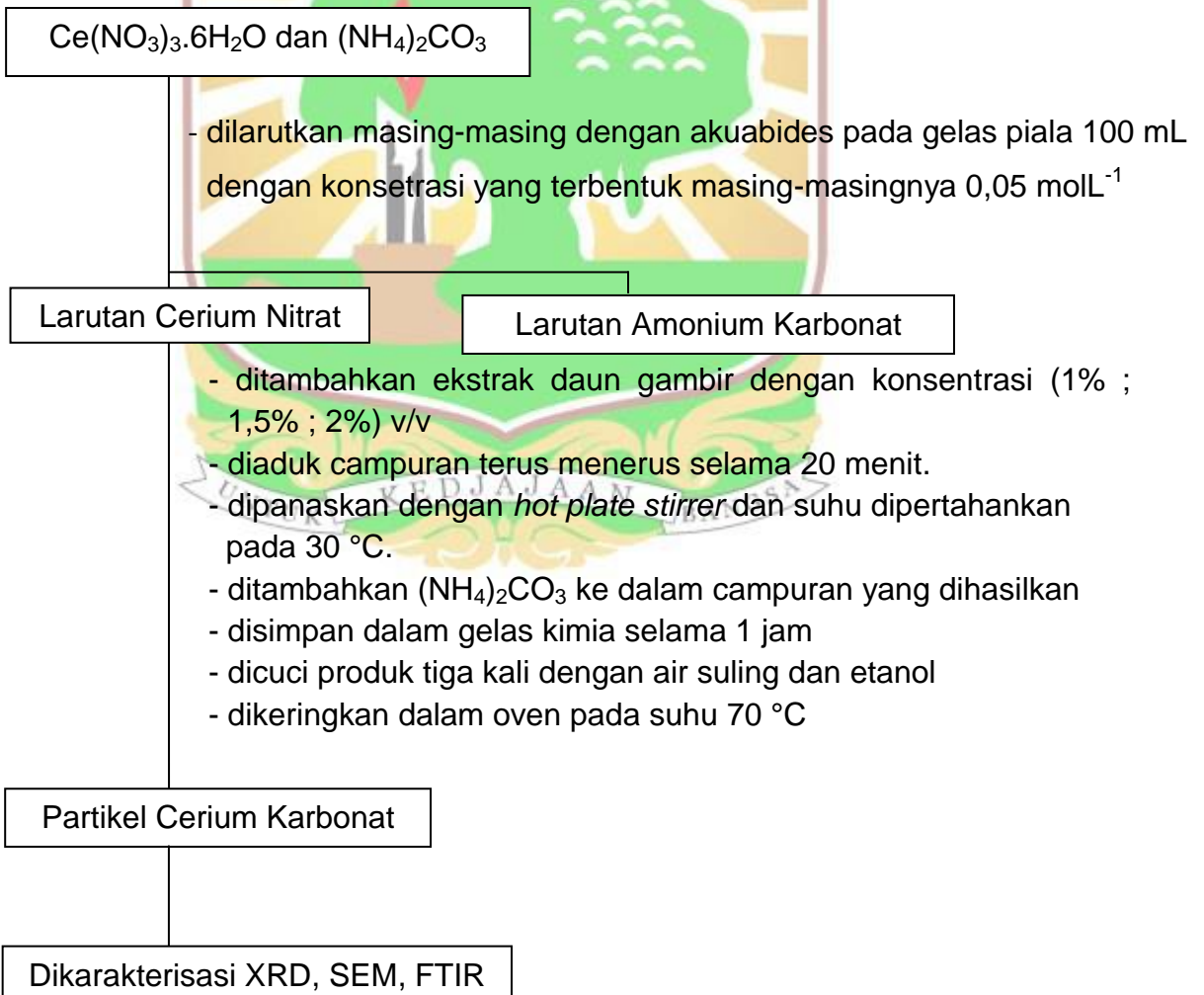
## LAMPIRAN

## Lampiran 1. Skema Kerja

## 1. Skema Kerja Preparasi Ekstrak Daun Gambir



## 2. Skema Kerja Sintesis Partikel Cerium Karbonat



## Lampiran 2. Perhitungan Dasar

1. Perhitungan massa  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  0.05 M

$$\text{massa} = 50 \text{ mL} \times \frac{0,05 \text{ mol}}{1 \text{ L}} \times \frac{1 \text{ L}}{1000 \text{ mL}} \times \frac{434,22}{1 \text{ mol}} = 1,085 \text{ gram}$$

2. Perhitungan Massa  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  0.05 M

$$\text{Massa} = 50 \text{ mL} \times \frac{0,05 \text{ mol}}{1 \text{ L}} \times \frac{1 \text{ L}}{1000 \text{ mL}} \times \frac{96,09 \text{ gram}}{1 \text{ mol}} = 0,24 \text{ gram}$$

3. Perhitungan volume ekstrak daun gambir 1% v/v

$$\text{Volume} = 100\% \times V_1 = 100 \text{ mL} \times 1\%$$

$$V_1 = \frac{100 \text{ mL} \times 1\%}{100\%} = 1 \text{ mL}$$

4. Perhitungan volume ekstrak daun gambir 1,5% v/v

$$\text{Volume} = 100\% \times V_1 = 100 \text{ mL} \times 1,5\%$$

$$V_1 = \frac{100 \text{ mL} \times 1,5\%}{100\%} = 1,5 \text{ mL}$$

5. Perhitungan volume ekstrak daun gambir 2% v/v

$$\text{Volume} = 100\% \times V_1 = 100 \text{ mL} \times 2\%$$

$$V_1 = \frac{100 \text{ mL} \times 2\%}{100\%} = 2 \text{ mL}$$

6. Perhitungan stoikiometri

$$\begin{aligned} \text{mol Ce}(\text{NO}_3)_3 &= 0,05 \text{ M} \times 50 \text{ mL} = 2,5 \text{ mmol} \\ &= 0,0025 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{mol } (\text{NH}_4)_2\text{CO}_3 &= 0,05 \text{ M} \times 50 \text{ mL} = 2,5 \text{ mmol} \\ &= 0,0025 \text{ mol} \end{aligned}$$



m	0,0025 mol	0,0025 mol	-	-
b	0,0017 mol	0,0025 mol	0,0025	0,0025
s	0,0008 mol	-	0,0025	0,0025

Sisa reaksi antara Cerium nitrat dan amonium karbonat adalah 0,0008 mol cerium nitrat yang larut pada saat pencucian dengan akuades dan etanol.

### Lampiran 3. Perhitungan Ukuran Kristal

Persamaan Deybe-Scherrer :

$$D = \frac{K \times \lambda}{\beta \times \cos\theta}$$

Keterangan: D = Ukuran kristal partikel,

K = Faktor bentuk dari kristal (0,9)

$\lambda$  = Panjang gelombang dari pancaran sinar x (1,54056 Å)

$\beta$  = Nilai dari Full Width at Half Maximum (FWHM) (rad)

$\theta$  = Sudut difraksi (derajat)

Tabel ukuran kristal  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$

$2\theta(^{\circ})$	FWHM	$\lambda(\text{nm})$	K	Ukuran Kristal
18.4772	0,3070	1,5406	0,9	26.21724436
37.4623	0,3070	1,5406	0,9	27.32437579
18,5058	0,3070	1,5406	0,9	26,2183
18,5144	0.4093	1,5406	0,9	19,6655

Tabel ukuran kristal  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 1% v/v

$2\theta(^{\circ})$	FWHM	$\lambda(\text{nm})$	K	Ukuran Kristal
10.3846	0.4093	1,5406	0,9	19.48942626
13.7654	0.614	1,5406	0,9	13.03249923
18.4971	0.307	1,5406	0,9	26.21798533
21.0842	0.8187	1,5406	0,9	9.870141698
27.2543	0.4093	1,5406	0,9	19.97166578
29.3355	0.307	1,5406	0,9	26.74889794
31.7692	0.7164	1,5406	0,9	11.52943309

34.6841	0.307	1,5406	0,9	27.10949847
37.5653	0.307	1,5406	0,9	27.33271748
44.4731	0.7164	1,5406	0,9	11.98015217
48.0371	0.614	1,5406	0,9	14.16508324

Tabel ukuran kristal  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 1,5% v/v

$2\theta(^{\circ})$	FWHM	$\lambda(\text{nm})$	K	Ukuran Kristal
10.4092	0.307	1,5406	0,9	25.98429306
18.5058	0.307	1,5406	0,9	26.21830954
21.0824	0.614	1,5406	0,9	13.1606863
27.2951	0.307	1,5406	0,9	26.62901941
29.3305	0.307	1,5406	0,9	26.74859247
34.6083	0.307	1,5406	0,9	27.1039058
37.6157	0.614	1,5406	0,9	13.66840457

Tabel ukuran kristal  $\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$  + EDG 2% v/v

$2\theta(^{\circ})$	FWHM	$\lambda(\text{nm})$	K	Ukuran Kristal
10.3798	0.307	1,5406	0,9	25.98368668
14.1177	0.307	1,5406	0,9	26.07479807
18.5144	0.4093	1,5406	0,9	19.66557406
19.8169	0.307	1,5406	0,9	26.26899227
21.4179	0.307	1,5406	0,9	26.33583352
22.4162	0.307	1,5406	0,9	26.38029619
27.3165	0.307	1,5406	0,9	26.63022739

29.2981	0.307	1,5406	0,9	26.74661448
33.1676	0.307	1,5406	0,9	27.00028534
34.6504	0.307	1,5406	0,9	27.10701027
37.633	0.307	1,5406	0,9	27.33821513
39.1939	0.307	1,5406	0,9	27.46825299
41.7223	0.307	1,5406	0,9	27.69251382
42.9223	0.307	1,5406	0,9	27.80499845
44.3403	0.307	1,5406	0,9	27.94306927
46.0333	0.307	1,5406	0,9	28.11539372
48.2845	0.4093	1,5406	0,9	21.26986801
49.7718	0.614	1,5406	0,9	14.2629286
56.0944	0.614	1,5406	0,9	14.66027632

