



Hak Cipta Dilindungi Undang-Undang

1. Dilarang mengutip sebagian atau seluruh karya tulis ini tanpa mencantumkan dan menyebutkan sumber:
 - a. Pengutipan hanya untuk kepentingan pendidikan, penelitian, penulisan karya ilmiah, penyusunan laporan, penulisan kritik atau tinjauan suatu masalah.
 - b. Pengutipan tidak merugikan kepentingan yang wajar Unand.
2. Dilarang mengumumkan dan memperbanyak sebagian atau seluruh karya tulis ini dalam bentuk apapun tanpa izin Unand.

SINTESIS SILIKA MELAPISI NANOPARTIKEL MAGNETIT DENGAN METODE SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA

Skripsi



**NOVI TAUFIK
06132056**

**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS ANDALAS
PADANG 2011**

**SINTESIS SILIKA MELAPISI NANOPARTIKEL MAGNETIT
DENGAN METODA SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA**

Skripsi diajukan untuk memperoleh gelar Sarjana

*Jurusan Kimia
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Universitas Andalas*

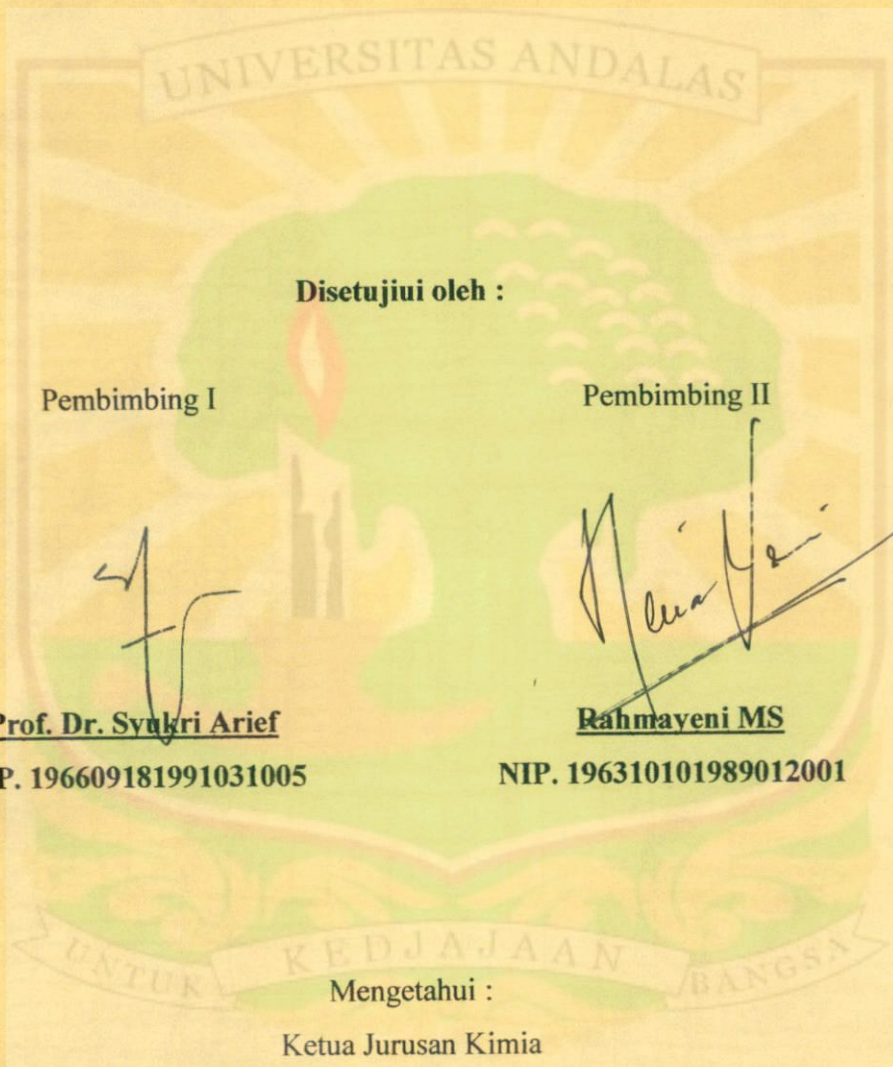
OLEH:

NOVI TAUFIK

06 132 056

**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS ANDALAS
PADANG
2012**

Skripsi dengan judul : **SINTESIS SILIKA MELAPISI NANOPARTIKEL
MAGNETIT DENGAN METODA SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA**
disusun oleh Novi Taufik (No. BP 06 132 056) dan diajukan sebagai salah satu
syarat untuk memperoleh gelar sarjana sains (Strata 1) pada Jurusan Kimia Fakultas
Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Andalas Padang.



Disetujui oleh :

Pembimbing I

Pembimbing II

Prof. Dr. Syukri Arief

NIP. 196609181991031005

Rahmayeni MS

NIP. 196310101989012001

Mengetahui :

Ketua Jurusan Kimia

Dr. Adlis Santoni

NIP. 196212031988111002

KATA PENGANTAR



Syukur Alhamdulillah penulis ucapkan kehadiran Allah SWT, karena berkat rahmat dan hidayah-Nya penulis dapat menyelesaikan penulisan skripsi ini yang merupakan salah satu syarat untuk menempuh Ujian Sarjana Kimia pada Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Andalas Padang.

Skripsi ini berjudul “SINTESIS SILIKA MELAPISI MAGNETIT NANOPARTIKEL DENGAN METODA SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA”, disusun berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan di Laboratorium Kimia Material Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Andalas Padang. Serta didukung oleh berbagai sumber literatur.

Pada kesempatan ini, penulis ingin menyampaikan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada :

1. Ibunda Dra. Nur Iman (alm) dan Ayahanda Drs H Mulyadi Zakaria. M.Ag. Yang telah memberi support dalam segala hal dimana tak ada ungkapan yang cukup untuk mengungkapkan rasa terima kasih dan syukur ini.
2. Orang tua dan keluarga penulis yang memberikan motivasi, dukungan moril dan materil.
3. Bapak Prof. Dr. Syukri Arief sebagai Dosen Pembimbing I dan Ibu Rahmayeni MS sebagai Dosen Pembimbing II yang memberikan ide, pengarahan dan juga nasihat selama studi, penelitian dan penulisan skripsi ini.
4. Ibu Zaharasma Kahar MSi dan Ibu Umiati Loekman MSi sebagai Pembimbing Akademik
5. Bapak Dr. Adlis Santoni selaku Ketua Jurusan Kimia
6. Bapak Dr. Mai Efdi, selaku Koordinator Pendidikan Jurusan Kimia Universitas Andalas

7. Bapak Dr. Zulhadjri selaku Kepala Laboratorium Kimia Material beserta Ibu Nofrida selaku Analis Laboratorium Kimia Material.
8. Bapak Prof. Dr. Syukri Arief dan bapak Adel Fisli dari BATAN Serpong yang telah membantu penulis dalam mengkarakterisasi hasil penelitian.
9. Ex'ujengcuters Jang Miki, M Arief A.Md, terus si gapuak Wezyah Adri, Ai bocet, Ai Nur serta teman-teman rekan kerja penelitian (nana, widi, cici, imel, rio, fikri, eka, beni, dila, januris) yang membantu penulis selama bekerja di laboratorium.
10. Keluarga besar UGD (Universitas Galau Darurat) Sebagai Rektor Ragil "Gaek" Marwa, dan staff M R Zaky Y H, Dedy "popok" Eka saputra, si nting Harry Ade Saputra, serta ketua yang dipecat diamana penulis berharap ia kembali tertawa bersama disini "Rendy Lesmana".
11. Keluarga besar ZOKURE Kimia angkatan 2006 serta keluarga BP 056.
12. Padaa adik-adik tercinta yang selalu memberi semangat dan support dalam melakukan penelitian dan penulisan, diak kandung Yulia Delfaedah, Riri Ramika, Dwi Kemala Putri, Yulia Natilova dan Lola Kumala Sari, lalu yang sedikit manja Widya Yuliani Fatiha lalu Viona Yolanda serta yang baru lahir seperti Reza Audina Putri, Fitriah Ramadhani dan Mia Luthfia Desna, si "kecil" Sari serta Flidyna Gustary.
13. Serta pada semua pihak yang telah membantu penulis dalam menyelesaikan penelitian dan penulisan yang tidak tersebut namanya karena terlalu banyak dan tidak mungkin ditulis satu persatu.

Penulis menyadari bahwa skripsi ini masih jauh dari kesempurnaan. Oleh karena itu dengan kerendahan hati penulis mengharapkan kritik dan saran demi perbaikan dimasa yang akan datang. Akhirnya penulis berharap semoga skripsi ini dapat bermanfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Padang, Januari 2012

Penulis

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN	i
KATA PENGANTAR	ii
ABSTRAK	iv
ABSTRACT	v
DAFTAR ISI	vi
DAFTAR TABEL	viii
DAFTAR GAMBAR	ix
DAFTAR LAMPIRAN	x
I. PENDAHULUAN	
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	2
1.3 Tujuan Penelitian	2
1.4 Manfaat Penelitian	3
II. TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Nanokomposit	4
2.2 Hidrazin	5
2.3 Metoda Sol Gel	5
2.3.1 Prekursor pada metoda Sol Gel	5
2.3.2 Reaksi pada metoda Sol Gel	6
2.3.3 Proses Sol Gel	6
2.4 Nanopartikel Magnetit (Fe_3O_4)	7
2.4.1 Struktur kristal nanopartikel magnetit (Fe_3O_4)	7
2.4.2 Sifat superparamagnetik dari nanopartikel magnetit (Fe_3O_4)	8
2.5 Nanokomposit kulit-inti $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$	10
III. METODOLOGI PENELITIAN	
3.1 Waktu dan Tempat Penelitian	13
3.2 Alat dan Bahan	13
3.2.1 Alat	13

3.2.2 Bahan	13
3.3 Prosedur Percobaan	13
3.3.1 Pembuatan nanopartikel magnetit	13
3.3.2 Pelapisan nanopartikel magnetit dengan silika.....	14
3.3.3 Karakterisasi	14
IV. HASIL DAN PEMBAHASAN	
4.1 Pembuatan nanopartikel Fe ₃ O ₄ /SiO ₂	15
4.1.1 Pembuatan nanopartikel magnetit	15
4.1.2 Pelapisan magnetit dengan silika	17
4.2 Karakterisasi	18
4.2.1 Analisis <i>Fourier Transform Infra Red Spectroscopy</i> (FT-IR)	18
4.2.2 Analisis <i>X-Ray Diffraction</i> (XRD)	18
4.2.3 Analisis <i>Scanning Electron Microscopy</i> (SEM)	21
4.2.4 Analisis <i>Vibrating Sample Magnetometer</i> (VSM)	24
V. KIMPULAN DAN SARAN	
5.1 Kesimpulan	27
5.2 Saran	27
DAFTAR PUSTAKA	28
LAMPIRAN	30

DAFTAR TABEL

Tabel 1. Ukuran kristal Fe_3O_4 dengan variasi jumlah penambahan TEOS	21
Tabel 2. Hubungan ketebalan pelapisan terhadap ukuran partikel dan kekuatan magnet	22



DAFTAR GAMBAR

Gambar 1. Struktur spinel kristal Fe_3O_4	5
Gambar 2. Interaksi material paramagnetik dengan besi oksida nanopartikel (1) ferromagnetik (2) antiferromagnetik (3) ferrimagnetik	18
Gambar 3. Proses aglomerasi dari nanopartikel Fe_3O_4	19
Gambar 4. (1) Arah magnet atau domain dari material besar Fe_3O_4 (2) arah magnet dari Fe_3O_4 nanopartikel	20
Gambar 5. (1) Gel $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ (2) Powder $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$	21
Gambar 6. Pola XRD	22
Gambar 7. Foto SEM	24
Gambar 8. Foto SEM	29
Gambar 9. <i>Hysteresis loop</i> nanopartikel magnetit dengan beberapa variasi penambahan TEOS	30

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1.	Dasar-dasar perhitungan yang digunakan dalam penelitian	29
Lampiran 2.	Skema kerja sintesis nanopartikel magnetit	30
Lampiran 3.	Skema kerja pelapisan nanopartikel magnetite dengan silika	31
Lampiran 4.	Perhitungan ukuran kristal Fe_3O_4 dengan metoda Scherrer	32
Lampiran 5.	Contoh perhitungan ukuran Kristal Fe_3O_4 secara manual	35
Lampiran 6.	Data JCPDS No. 19-0629	36
Lampiran 7.	Spektrum FTIR	38



SINTESIS SILIKA MELAPISI NANOPARTIKEL MAGNETIT DENGAN METODA SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA

Novi Taufik (06132056)

Dibimbing oleh

Prof. Dr. Syukri Arief*, Rahmayeni MS**

*Pembimbing I, **Pembimbing II

ABSTRAK

Telah dilakukan penelitian mengenai pelapisan silika pada permukaan nanopartikel magnetit (Fe_3O_4). Ini dilakukan untuk memperluas aplikasi dan meningkatkan kestabilan kimianya. Sintesis nanopartikel magnetit dilakukan dengan mereduksi parsial Fe^{3+} dengan menggunakan hidrazin. Sedangkan pelapisan nanopartikel magnetit oleh silika dilakukan dengan metoda sol-gel. Dimana digunakan Tetra Etil Orto Silikat (TEOS) sebagai sumber silika. Hasil analisa FTIR menunjukkan ikatan Fe-O-Si pada bilangan gelombang 1024 cm^{-1} yang mengindikasikan terbentuknya pelapisan. Hasil analisa *X-Ray Diffraction* (XRD) menunjukkan nanopartikel magnetit telah berhasil dibuat (JCPDS No. 19-0629) dan keberhasilan pelapisan oleh silika dapat dilihat dari ukuran kristal yang meningkat pada setiap variasi jumlah penambahan TEOS (11.16 nm untuk 1 mL, 12.69 nm untuk 2 mL dan 17.05 nm untuk 3 mL). Analisa *Scanning Electron Microscopy* (SEM) memperlihatkan morfologi nanopartikel magnetit yang telah dilapisi oleh silika dimana masih terjadi sedikit aglomerasi yang menandakan setelah pelapisan nanopartikel magnetit masih memiliki energi yang besar. Hasil analisa VSM menunjukkan nilai kejenuhan magnetisasi (M_s) pada pelapisan 1 mL, 2 mL dan 3 mL TEOS adalah 27.7 emu/g, 26.4 emu/g dan 14.9 emu/g dimana makin tebal pelapisan nilai M_s akan makin berkurang.

Kata kunci : Magnetit, Silika, Sol-Gel

SYNTHESIS SILICA COATING MAGNETITE NANOPARTICLES VIA SOL GEL METHOD AND ITS CHARACTERIZATION

Novi Taufik (06132056)

Supervised By

Prof. Dr. Syukri Arief*, Rahmayeni MS**

*1st Advisor, **2nd Advisor

UNIVERSITAS ANDALAS
ABSTRACT

The research in magnetite nanoparticle surface (Fe_3O_4) coated by silica has been done. Its purpose is to extend the applications and increase the stability of its chemical behaviour. Preparation of Magnetite nanoparticle was done by partial reduction of Fe^{3+} to Fe^{2+} by using hydrazine. Therefore, the magnetite nanoparticle coated by silica with using sol-gel method. Tetra Ethyl Ortho Silicate (TEOS) was used as silica source. The FTIR result shown the Fe-O-Si bond formed in the wavenumber 1024 cm^{-1} indicated that the coating was formed. The XRD result shown magnetite nanoparticle (JCPDS standard No.19-0629) was coated by the silica can be seen by crystallite size increase with increasing TEOS volume (11.1 nm for 1 mL, 12.69 nm for 2 mL and 17.05 nm for 3 mL). The SEM analysis shown the morphology of silica coated magnetite was still in agglomeration phase indicating it was still have tremendous energy. The VSM result shown the purity value of magnetization (M_s) at 1 mL, 2 mL, and 3 mL TEOS was 27,7 emu/g and 14.9 emu/g where the greater value of coating thickness the value of M_s was decrease.

Keyword : Magnetite, Silica, Sol-Gel

UNTUK KEDJAJAAN BANGSA

BAB I. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Nanoteknologi pada saat ini telah menjadi salah satu pusat perhatian para peneliti karena mempunyai fungsi yang beragam dan aplikasi yang sangat luas. Produk-produk yang terbuat dari partikel berukuran nano mempunyai fungsi yang jauh lebih baik apabila dibandingkan dengan produk yang terbuat dari material yang berukuran lebih besar. Perbedaan yang mencolok antara material berukuran nano apabila dibandingkan dengan material berukuran besar adalah luas permukaannya, yang menjadikannya lebih reaktif apabila bereaksi.¹

Penelitian mengenai nanomaterial telah banyak dilakukan, metoda yang digunakan juga beragam, diantaranya adalah sonokimia, hydrothermal, mikroemulsi, fasa gas, sol-gel, dan lain lain. Diantara metoda-metoda tersebut metoda sol-gel lebih menarik perhatian karena tidak menggunakan alat yang rumit dan mahal, selain itu hasil dari metoda ini mempunyai kehomogenan yang sangat baik.¹ Dengan mengatur proses dan kondisi lingkungannya kita juga dapat mengatur ukuran dan morfologi dari material yang kita inginkan, ditambah lagi dengan menggunakan metoda ini kita tidak perlu menggunakan surfaktan.

Telah banyak senyawa oksida dari logam transisi yang telah berhasil disintesis dengan menggunakan metoda sol-gel. Tiap logam mempunyai sifat yang berbeda sehingga aplikasinya akan berbeda juga. Salah satu sifat yang paling menarik dari logam berukuran nano adalah mempunyai sifat magnetik yang sangat baik seperti oksida besi.

Senyawa Fe_3O_4 , Fe_2O_3 dan FeOOH merupakan contoh dari nanopartikel yang telah berhasil dibuat.² Senyawa Fe_3O_4 (magnetit) mempunyai sifat magnetik yang paling tinggi apabila dibandingkan dengan FeOOH dan Fe_2O_3 , akan tetapi Fe_3O_4 mempunyai energi permukaan yang sangat besar sehingga menjadikannya mudah teraglomerasi,² dan untuk menghindari terjadinya aglomerasi kita dapat melapisinya dengan senyawa yang bersifat inert dan mempunyai kestabilan kimia yang baik yaitu silika¹ yang nantinya akan membentuk nanokomposit kulit-inti.

Dengan pelapisan oleh silika pada seluruh permukaan magnetit maka akan terbentuk suatu nanokomposit kulit-inti yang mana kestabilan nanopartikel

tersebut juga akan meningkat, baik terhadap suhu, maupun terhadap reduktor dan oksidator,³ sehingga produk tersebut mempunyai ketahanan kimia dan fisika yang lebih baik. Bahkan dengan pelapisan ini maka aplikasinya dapat mencakup *drug delivery system*,⁴ karena dengan pelapisan ini nanopartikel magnetik tersebut menjadi *biocompatible* yang tidak berbahaya terhadap tubuh. Selain itu silika yang terbentuk pada permukaan nanopartikel magnetik akan mengurangi interaksi tarik-menarik yang disebabkan gaya magnetik dipolar¹ sehingga dapat mencegah terjadinya aglomerasi pada nanopartikel magnetik. Sebagaimana diketahui silika mempunyai gugus silanol¹ pada permukaannya sehingga nantinya akan dapat difungsionalisasi dengan berbagai macam gugus fungsional³ sehingga dapat digunakan untuk berbagai aplikasi yang lebih luas lagi.¹

Pada penelitian ini akan dibuat suatu nanokomposit kulit-inti⁵ dengan material yang mempunyai sifat superparamagnetik dan silika sebagai pelapis untuk meningkatkan kestabilan.⁵ Metoda yang akan digunakan adalah metoda sol-gel dengan pengaturan dalam suasana basa sehingga morfologi dari material tersebut dapat terbentuk secara baik.⁶

1.2 Perumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang di atas dapat dirumuskan suatu permasalahan sebagai berikut :

1. Apakah kestabilan dari nanopartikel magnetit akan meningkat apabila permukaannya dilapisi oleh silika.
2. Apakah pengaruh ketebalan pelapisan terhadap kekuatan magnet dari nanokomposit kulit-inti yang terbentuk.

1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan perumusan masalah di atas maka penelitian ini bertujuan untuk :

1. Membuat nanokomposit kulit-inti $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ yang stabil dan tidak teraglomerasi dengan menggunakan metoda sol-gel.
2. Untuk mempelajari perubahan kekuatan magnet pada setiap perbedaan ketebalan pelapisan silika pada nanokomposit kulit-inti $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$.
3. Karakterisasi nanokomposit kulit-inti $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$.

1.4 Manfaat Penelitian

Dari penelitian ini diharapkan dapat menghasilkan material magnetit (Fe_3O_4) yang lebih baik dan dapat digunakan dalam berbagai bidang sehingga dapat meningkatkan mutu kehidupan. Dan juga dapat menjadi acuan untuk penelitian selanjutnya dalam pembuatan nanokomposit kulit-inti dengan menggunakan bahan dasar dengan sifat magnetik yang besar.



BAB II. TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Nanokomposit

Nanoteknologi adalah pembuatan dan penelusuran tentang material yang mempunyai ukuran dimensinya yaitu nano ($1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$). Sifat dari material yang mempunyai ukuran nano sangat berbeda sekali dengan material dengan ukuran besar. Ia akan lebih tahan lama, dan jauh lebih baik jika dijadikan produk rumah tangga, obat-obatan, komunikasi, agrikultur, industri, dan lainnya.⁶

Nanokomposit merupakan suatu material komposit dengan struktur nano yang merupakan logam oksida yang terdispersi pada polimer⁷ atau keramik yang selanjutnya. Beberapa jenis nanokomposit telah berhasil dibuat, diantaranya adalah model kismis dan kulit-inti. Model kismis adalah nanokomposit dimana terjadi *pendopingan* antara material penguat dan matriksnya, sedangkan nanokomposit kulit-inti adalah nanokomposit yang terbentuk karena adanya pelapisan antara material penguat oleh matriksnya.

Nanokomposit dengan model kismis pada umumnya dibuat untuk memaksimalkan fungsi dari material yang *didoping*, seperti *pendopingan* logam besi pada permukaan Ti untuk memaksimalkan fungsi fotokatalitik dari Ti. Sedangkan pada nanokomposit model kulit-inti dibuat untuk menstabilkan material yang akan dilapisi dengan melapisinya dengan material yang mempunyai sifat inert dan tahan terhadap perubahan fisika dan kimia serta pada matriks tertentu, dimana matriks tersebut mempunyai gugus fungsi yang dapat difungsionalisasi sehingga dapat digunakan untuk aplikasi yang lebih luas.

Metoda sol-gel telah terbukti dapat menghasilkan partikel yang terlapisi sangat baik pada matriks yang berbeda, kita dapat mengatur morfologi, tekstur, struktur dan komposisi dengan mengatur komposisi jumlah zat dan kondisi lingkungannya pada saat proses berlangsung. Pemilihan jenis pelarut dan bahan dasar nantinya juga akan mempengaruhi dari hasil yang akan didapat.

Sifat dari nanopartikel tersebut tidak hanya bergantung pada sifat material pembentuk itu sendiri, tapi juga tergantung pada karakteristik dan morfologi bentuk permukaannya. Banyak saat ini produk nanokomposit teraplikasi seperti

komponen mekanik yang sangat ringan, optik non-linier, katoda baterai, nanowires, sensor dan aplikasi lain.

2.2 Hidrazin

Hidrazin merupakan basa dan pereduksi yang sangat reaktif. Senyawa dengan rumus molekul N_2H_4 ini juga sering disebut sebagai diamine, diamide, nitrogen hydride, atau levoxine. Hidrazin merupakan cairan tidak berwarna, mudah terbakar dan meledak, dan sangat larut dalam air.⁸

Kegunaan utamanya adalah sebagai bahan bakar roket energi tinggi, sebagai reaktan dalam fuel cell militer, penyepuhan nikel, polimerisasi uretan, untuk menghilangkan halogen dari air limbah, pengikat oksigen dalam boiler feed water untuk mencegah korosi, dan dalam perkembangan fotografi. Menurut sejarah, hidrazin digunakan sebagai zat terapi dalam pengobatan tuberkolosis, sickle cell anemia, dan penyakit kronis non-spesifik.⁸

2.3 Metoda Sol-Gel

Menghasilkan material baru yang kuat untuk aplikasi hal-hal paling baru merupakan salah satu ilmu pengetahuan yang besar dan teknik yang menantang saat ini. Salah satu metode modern untuk menghasilkan material anorganik dan anorganik/organik paling baru dari prekursor molekuler adalah proses sol-gel.

Proses sol-gel bisa dijelaskan sebagai proses pembentukan jaringan oksida melalui reaksi polikondensasi molekul prekursor dalam media cair. Selain itu proses sol-gel juga bisa dikatakan sebagai proses pembentukan material melalui sol, pembentukan gel (*gelation*) dari sol, dan diakhiri dengan pelepasan pelarut.

Koloid merupakan suspensi dengan fasa terdispersi yang sangat kecil yaitu sekitar 1-1000 nm. Sol adalah suspensi koloid partikel padat dalam cairan, sedangkan gel merupakan suspensi koloid partikel cair dalam padatan⁹.

2.3.1 Prekursor pada Proses Sol-Gel

Dalam proses sol-gel, prekursor dalam pembuatan koloid terdiri dari unsur logam atau metalloid yang dikelilingi oleh bermacam-macam komponen organik. Tetra Etil Orto Silikat (TEOS), adalah senyawa logam-organik yang merupakan logam

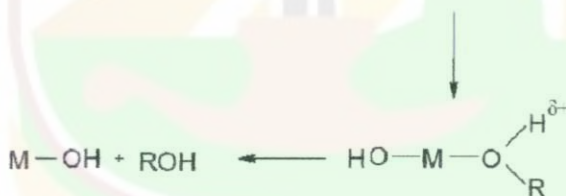
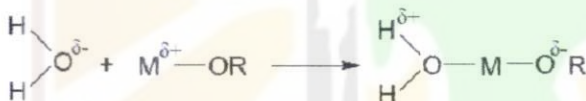
alkoksida yang telah banyak dipelajari untuk preparasi partikel dalam larutan alkohol berair (kimia sol-gel) dan juga untuk preparasi gelas dan gel monolitik.¹⁰

2.3.2 Reaksi pada Proses Sol-Gel

Proses sol-gel tergantung pada hidrolisis dan kondensasi dari prekursor. Kebanyakan proses sol-gel menggunakan senyawa alkoksida sebagai prekursor. Alkoksida menyediakan sumber monomer “anorganik” yang cocok, yang biasanya larut dalam berbagai jenis pelarut, khususnya alkohol. Alkohol memungkinkan penambahan air yang cocok untuk memulai reaksi.¹¹

Keuntungan lain dari alkoksida adalah kemungkinan untuk mengontrol kecepatan dengan mengontrol hidrolisis dan kondensasi dengan bahan-bahan kimia. Dengan menggunakan alkoksida sebagai prekursor, proses sol-gel bisa disederhanakan dengan reaksi berikut:¹¹

Hidrolisis logam alkoksida



Kondensasi



2.3.3 Proses Sol-Gel

Dalam proses sol-gel, ada beberapa faktor yang berpengaruh dalam menghasilkan produk yang diinginkan, yaitu:¹²

a. Senyawa logam

Senyawa logam yang digunakan sebagai bahan pemula pada reaksi hidrolisis dan kondensasi disebut prekursor. Persyaratan umum dari prekursor yang digunakan adalah harus dapat larut dalam media reaksi dan harus cukup reaktif dalam pembentukan gel. Mackenzie menyimpulkan bahwa perbedaan

senyawa alkoksida yang digunakan sebagai prekursor dalam proses sol-gel akan memberikan perbedaan yang jelas pada densitas, ukuran pori, dan luas permukaan gel.

b. Katalis

Penggunaan katalis menyebabkan reaksi hidrolisis menjadi lebih cepat dan sempurna. Katalis yang umum digunakan dalam reaksi pembentukan gel adalah asam anorganik seperti HCl, HNO₃, dan H₂SO₄. Disamping itu, asam organik juga dapat digunakan sebagai katalis seperti asam asetat atau pembentukan gel dan sifat fisik gel. Namun demikian, katalis tidak diperlukan dalam reaksi kondensasi.

c. Pelarut

Pada tahap awal pelarut digunakan untuk menghomogenkan campuran bahan dasar dan air karena sifat kepolarannya berbeda. Pelarut ini berfungsi untuk menghalangi pemisahan fasa cair-cair pada waktu reaksi hidrolisis dan mengontrol konsentrasi logam. Pelarut yang umum digunakan dalam reaksi pembentukan gel adalah alkohol, karena alkohol mempunyai tekanan uap yang lebih tinggi pada temperatur kamar.

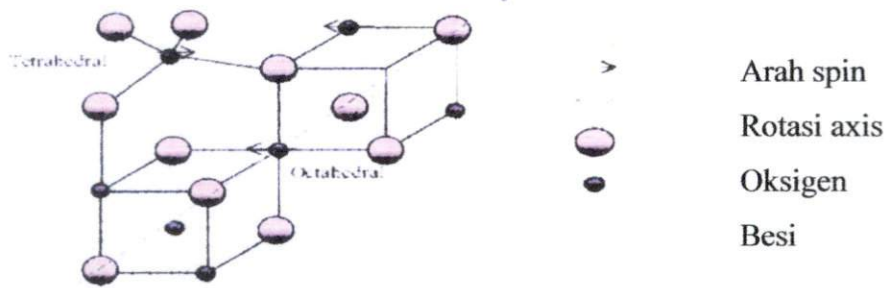
d. Temperatur

Temperatur dalam proses sol-gel akan mempengaruhi kecepatan pembentukan gel. Proses sol-gel yang telah dilakukan pada temperatur yang lebih tinggi dari temperatur kamar menyebabkan laju hidrolisis akan menjadi cepat dan juga menyebabkan gel cepat terbentuk.

2.4 Nanopartikel Magnetit (Fe₃O₄)

2.4.1 Struktur Kristal Nanopartikel Magnetit (Fe₃O₄)

Nanopartikel Fe₃O₄ adalah oksida besi yang paling menarik karena mempunyai kation besi dengan dua valensi yaitu Fe²⁺ dan Fe³⁺. Nanopartikel Fe₃O₄ adalah mineral berbentuk kubik dengan putaran spin yang terbalik yang mempunyai formula umum yaitu Fe₃O₄ = Fe (Fe³⁺)_A(Fe³⁺Fe²⁺)_BO₄, dimana A dan B melambangkan kation besi dalam bentuk tetrahedral dan oktahedral. Kation Fe²⁺ dan setengah Fe³⁺ menempati posisi oktahedral sedangkan setengahnya lagi kation Fe³⁺ menempati posisi tetrahedral.¹



Gambar 1. Struktur spinel kristal Fe_3O_4

Sebagaimana Gambar 1 diatas spin elektron Fe^{3+} pada celah oktahedral terhubung antiparalel terhadap celah tetrahedral dan tidak ada magnetisasi dari ion ini, sedangkan pada spin alektron Fe^{2+} terhubung secara paralel terhadap ion Fe^{3+} pada oktahedral tetangga sehingga terbentuk magnetisasi.

2.4.2 Sifat Superparamagnetik dari Nanopartikel Magnetit (Fe_3O_4)

Oksida besi Fe_3O_4 nanopartikel memiliki sifat magnetik yang membuatnya mempunyai respon terhadap medan magnet yang muncul dari pergerakan elektron. Elektron berputar pada orbitnya disekitar atom pusat nantinya akan menyebabkan terbentuknya dipole magnetik. Dipole magnetik dapat juga bersejajar dengan arah yang terbalik, yang nantinya akan menyebabkan sifat magnetik yang besar. Ada beberapa bentuk sifat magnetik nanopartikel magnetit yang dapat menguat tergantung cara mereka saling berinteraksi. Beberapa atom atau ion yang tidak berpasangan disebut juga dengan paramagnetik. Material magnetit tersebut mempunyai momen magnetik yang stabil dengan adanya gaya magnetik dari luar. Pada saat ion atau atom paramagnetik berada berdekatan dan satu dengan lainnya sangat mempengaruhi disebabkan sifat dipole magnetik dari tetangganya maka akan terbentuk gaya magnet yang lebih rumit. Apabila berinteraksi dengan ferromagnetik maka akan menyebabkan arah interaksi dari dipole magnetik akan sama dengan gaya magnetik dari luar. Antiferromagnetik akan terbentuk pada saat berinteraksi antar atom paramagnetik berlawanan dengan gaya dipole magnetiknya. Ferrimagnetik adalah material yang megnetik dipole dari atom pada

sub-lattice yang berbeda berlawanan. Ini terjadi pada saat *sub-lattice* dari material tersebut mempunyai ion yang berbeda, seperti ion dengan valensi yang berbeda.



Gambar 2. Interaksi material paramagnetik dengan besi oksida nanopartikel (1) ferromagnetik (2) antiferromagnetik (3) ferrimagnetik

Fe_3O_4 dengan ukuran nano mempunyai energi permukaan yang sangat tinggi karena rasio luas permukaan yang besar. Karena itu mereka cenderung untuk berinteraksi satu sama lain untuk membentuk agregat untuk meminimalisasi energi permukaannya.^{1,2} Akan tetapi karena pada dasarnya Fe_3O_4 sudah bersifat paramagnetik maka hanya akan ada tambahan energi untuk teragregasi dikarenakan interaksi dipole-dipole.

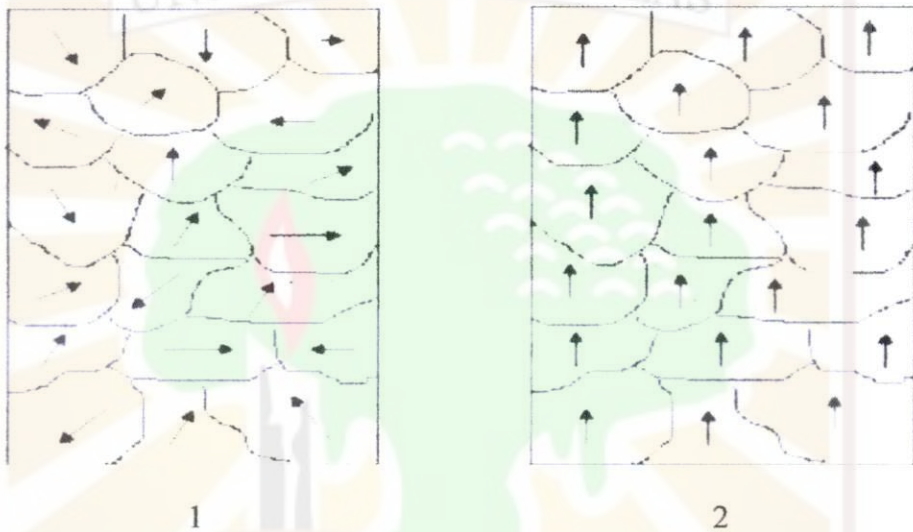


Gambar 3. Proses aglomerasi dari nanopartikel Fe_3O_4

Apabila ukuran dari Fe_3O_4 diperkecil sehingga mencapai ukuran nano (dibawah 30 nm), ia akan kehilangan sifat bulk paramagnetik dan berubah menjadi superparamagnetik. Superparamagnetik berhubungan dengan ukuran terbatas atau kecil luas permukaan yang mendominasi kemampuan magnetik dari tiap nanopartikel. Sifat paramagnetik muncul saat energi panas yang berada dalam daerah magnet cukup untuk melampaui gaya magnet coupling antara nanopartikel,

yang menyebabkan atomik dipole magnetiknya berubah secara tak beraturan. Jika berada dalam gaya magnet dari luar maka nanopartikel akan menerima magnetisasi, akan tetapi dikarenakan tingginya energi panas, membuatnya menjadi tidak teratur saat gaya magnet dari luar dihilangkan dan nanopartikel tidak lagi mempunyai sisi induksi magnet.

Sifat superparamagnetik dari nanopartikel magnetit tidaklah biasa ditemukan ia hanya menunjukkan satu arah magnetik sebagaimana gambar dibawah



Gambar 4. (1) Arah magnet atau domain dari material besar Fe_3O_4 (2) arah magnet dari Fe_3O_4 nanopartikel

Sebagaimana terlihat pada Gambar 3, arah magnet pada material besar tidak beraturan yang artinya akan menyebabkan akan saling menghilangkan gaya magnet tersebut, berbeda dengan dalam ukuran nano, mempunyai satu arah yang saling menguatkan satu sama lain. Spin elektron yang sama membentuk susunan magnetik yang di sebut domain.

2.5 Nanokomposit kulit-inti Fe_3O_4/SiO_2

Salah satu pengembangan dari nanokomposit adalah nanokomposit kulit-inti atau *core-shell*. Komposit ini terbentuk dari material yang dilapisi atau *dicoating* dengan material lain dengan ukuran nm, dan juga struktur kulit-inti adalah komposit yang merupakan pelapisan inti dengan matriks dari material yang

digunakan. Perlu juga diperhatikan bahwa material yang berukuran nano mudah teraglomerasi sehingga material pelapis yang akan digunakan harus dipilih dengan baik sehingga aglomerasi dapat dihindari, dan material tersebut akan terdispersi secara baik.⁴

Pemilihan matriks yang akan melapisi dari inti nanopartikel penting, karena nantinya material pelapis ini yang akan berinteraksi dengan lingkungan luar dan melindungi inti komposit tersebut dari pengaruh lingkungan. Seperti pelapisan magnetit dengan menggunakan silika yang mana nantinya silika akan melindungi magnetit teroksidasi menjadi hematite (Fe_2O_3) dimana kekuatan magnetik dari hematit lebih kecil dibandingkan magnetit. Beberapa matriks yang dapat digunakan sebagai pelapis diantaranya adalah keramik, polimer serta material yang bersifat inert.

Nanopartikel yang mempunyai struktur kulit-inti mempunyai kestabilan terhadap suhu dan kimiawi yang sangat baik, dan sitotoksik yang rendah.⁷ Pelapisan juga dapat berfungsi untuk mencegah terjadinya oksidasi terhadap inti dari partikel tersebut.³ Ketika suatu nanopartikel dilapisi oleh lapisan polimer atau lapisan anorganik seperti silika maka lapisan tersebut akan memberikan suatu gugus fungsional lainnya yang nantinya akan dapat digunakan untuk reaksi penggabungan yang akan memberikan fungsi atau manfaat tambahan untuk penggunaan selanjutnya terhadap partikel tersebut.¹ Tebalnya pelapis dari inti tersebut akan mempengaruhi dari sifat nanokomposit kulit-inti tersebut.¹³

Telah dijabarkan sebelumnya bahwa nanopartikel magnetit mempunyai sifat superparamagnetik yang bisa diaplikasikan dalam berbagai bidang, akan tetapi mempunyai kelemahan yaitu mudah teraglomerasi, oleh karena itu untuk membuatnya lebih stabil terhadap lingkungan kimia luarnya, nanopartikel magnetit akan dilapisi atau *dicoating* dengan menggunakan silika. Sifat superparamagnetik yang dimiliki oleh nanopartikel magnetit disebabkan karena adanya *single domain* yang tidak dimiliki oleh *bulk* magnetit dimana sifat ini bisa hilang dengan adanya gaya dipolar anisotropik yang membuat magnetit dengan ukuran nano teraglomerasi.

Digunakan silika karena ia bersifat inert dan mempunyai gugus silanol pada permukaannya nantinya akan bisa digunakan untuk variasi aplikasi lainnya.⁸

Pada saat setelah pelapisan maka nanopartikel magnetit akan memiliki daya tahan terhadap panas lebih baik, kestabilan kimianya juga meningkat sehingga tidak mudah teroksidasi maupun tereduksi oleh kondisi lingkungan sekitar, ia juga tidak akan bersifat sitotoksik sehingga tidak akan membahayakan bagi tubuh manusia.



BAB III. PROSEDUR PENELITIAN

3.1 Tempat dan Waktu

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia Material Jurusan Kimia FMIPA Universitas Andalas mulai Juli 2010 hingga Desember 2011. Karakterisasi morfologi permukaan sampel menggunakan peralatan SEM dan penentuan struktur, orientasi dan komposisi kristal dalam produk yang didapat menggunakan peralatan XRD di laboratorium Kimia Material Universitas Gifu, Jepang. Serta penentuan sifat magnetnya menggunakan peralatan VSM dilakukan di PTBIN Badan Tenaga Atom Nasional (BATAN), Serpong, Tangerang.

3.2 Alat dan Bahan

3.2.1 Alat

Peralatan yang digunakan diantaranya adalah beberapa peralatan gelas, hot plate magnetik strirer, timbangan analitik KERN ELJ, oven, corong Buchner, furnace, dan desikator. Sedangkan instrument yang digunakan adalah, FTIR JASCOFTIR 460 PLUS, SEM Hitachi H-8100, XRD Philips PW 1710, dan VSM tipe OXFORD VSM1.2H.

3.2.2 Bahan

Adapun bahan yang digunakan adalah Tetra Etil orto Slikat (TEOS) Merck, $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ Merck, Etanol ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$), Ammonium Hidroksida (NH_4OH), Natrium Hidroksida (NaOH), dan hidrazin (N_2H_4) serta aquadest (H_2O).

3.3 Prosedur Percobaan

3.3.1 Pembuatan Nanopartikel Magnetit

Nanopartikel Fe_3O_4 atau magnetit mempunyai atom Fe dengan dua bilangan oksidasi yaitu +3 dan +2. Magnetit dibuat dengan menggunakan Fe(III) nitrat nonahidrat atau $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ sebagai prekursor besi, TEOS sebagai prekursor silika dan hidrazin sebagai reduktor. Larutan besi nitrat 50 mmol dibuat dengan menggunakan pelarut 40 mL etanol dalam suhu kamar sekitar 25-27°C dan diaduk selama 1 jam. Kemudian larutan tersebut direduksi parsial dengan menggunakan hidrazin 20 mmol sehingga perbandingan mol Fe^{3+} dengan Fe^{2+} yang terbentuk adalah 3:2, lalu kemudian pH larutan diubah menjadi 13 dengan menggunakan

NaOH sambil distirer selama 30 menit, sehingga nantinya akan terbentuk magnetik fluid. Magnetik fluid yang terbentuk dilakukan penguapan pelarut pada suhu 100°C yang nantinya akan terbentuk nanopartikel magnetit.

3.3.2 Pelapisan nanopartikel Magnetit dengan Silika

Magnetit yang terbentuk sebanyak 2g didispersikan pada campuran pelarut etanol 160 mL dan aquadest 40 mL, kemudian stirrer sampai homogen. Setelah homogen dilakukan penambahan NH_4OH 5 mL, lalu kemudian dilakukan penambahan TEOS dengan variasi 1 mL, 2 mL dan 3 mL tetes per tetes dan stirrer selama 12 jam sehingga nantinya akan terbentuk gel nanopartikel magnetit yang dilapisi oleh silika melalui proses hidrolisis dan kondensasi. Gel yang terbentuk difurnace pada suhu 200°C untuk menghilangkan zat organik. Lalu kemudian hasil yang didapat dicuci dengan menggunakan air distilasi secara berulang kali.

3.3.3 Karakterisasi

Karakterisasi nanopartikel magnetit yang dilapisi oleh silika dilakukan dengan X-Ray Diffraction (XRD) untuk menentukan kristalinitas material terbentuk serta menentukan ukuran kristal. Scanning Electron Microscopy (SEM) digunakan untuk melihat morfologi permukaan dan keseragaman hasil yang didapat, lalu dengan menggunakan Vibrating Sample Magnetometer (VSM) untuk menentukan kekuatan magnetik dari material yang kita buat.

IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Pembuatan Fe₃O₄/SiO₂ Nanopartikel

4.1.1 Pembuatan Nanopartikel Magnetit

Pada penelitian ini, senyawa Fe₃O₄/SiO₂ dibuat melalui dua tahap yaitu pembuatan partikel Fe₃O₄ dan kemudian dilanjutkan dengan *pengcoatingan* dengan SiO₂ dimana metoda yang digunakan adalah metoda sol gel. Metoda sol gel merupakan suatu metoda pembentukan jaringan oksida melalui reaksi polikondensasi molekul prekursor dalam media cair. Selain itu proses sol-gel juga bisa dikatakan sebagai proses pembentukan material melalui sol, pembentukan gel (*gelation*) dari sol, dan diakhiri dengan pelepasan pelarut. Prekursor yang digunakan adalah tetra etil orto silikat (TEOS) sebagai sumber silika, besi nitrat berhidrat sebagai sumber besi serta aquadest dan etanol sebagai pelarut. Selain bahan dasar tersebut, pada penelitian ini juga digunakan hidrazin sebagai reduktor.

Penggunaan jalur reduksi parsial pada pembuatan magnetit dapat dijelaskan dengan reaksi berikut:¹⁵

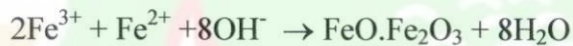


Pembuatan sol dilakukan dengan melarutkan besi(III) nitrat nonahidrat dalam pelarut etanol yang kemudian di stirrer hingga larut. Kemudian larutan besi nitrat direduksi parsial dengan menggunakan hidrazin dan ditambahkan dengan NaOH (pH 13) sehingga menghasilkan sol magnetit yang didiamkan selama 18 jam, yang kemudian dipanaskan pada suhu $\pm 110^\circ\text{C}$ untuk menghilangkan pelarut sehingga terbentuk partikel Fe₃O₄.

Penggunaan basa-basa alkali kuat seperti KOH, NaOH dan LiOH dapat menyebabkan pembentukan senyawa-senyawa besi non magnetik terutama hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$). Dengan memperhatikan oksidasi Fe²⁺ menjadi Fe³⁺ pada penambahan larutan basa, rasio molar awal 2:3 lebih cocok digunakan. Alternatif lainnya jika kita tetap ingin menggunakan perbandingan 1:2 pada penggunaan basa-basa alkali kuat adalah menggunakan atmosfer nitrogen selama proses.¹⁴

Peningkatan pH 13 harus dilakukan dengan cepat untuk menjaga ion Fe^{2+} tidak berubah menjadi Fe^{3+} sebelum ferrihidrit sebagai spesi intermediet berinteraksi dengan Fe^{2+} membentuk magnetit. Potensial oksidasi Fe^{2+} yang tergantung kepada pH merupakan akibat termodinamika transfer elektron dalam larutan. Pada pH tinggi, kondisi ferri (Fe^{3+}) relatif lebih stabil dari pada ferro (Fe^{2+}) karena afinitas Fe^{3+} terhadap ion OH^- lebih kuat.

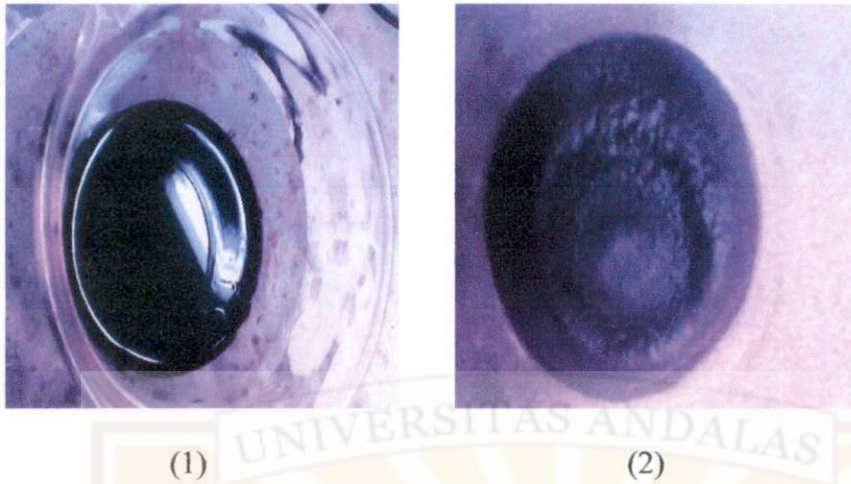
Ada dua proses reaksi pembentukan magnetit dari garam-garam besi dengan menggunakan basa alkali kuat seperti NaOH sebagai pengatur pH dan dengan hasil dari reduksi parsial hidrazin :¹⁵



Reaksi yang kedua adalah reaksi dari hidrazin yang telah tereduksi



Penggunaan jalur reduksi parsial dalam pembuatan partikel magnetit akan menghasilkan ukuran kristal yang lebih kecil dibandingkan jika proses pembuatan dilakukan dengan menyediakan Fe^{2+} dan Fe^{3+} dari luar.¹⁶ Ini dikuatkan dengan ukuran kristal dari hasil yang didapat dalam penggunaan rumus scherrer pada XRD yang diperlihatkan (tabel 1) dimana ukuran kristal yang didapat berkisar antara 9-17 nm



Gambar 5. (1) Gel $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ (2) Powder $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$

4.1.2 Pelapisan Magnetit dengan Silika

Partikel Fe_3O_4 yang terbentuk kemudian sebanyak 2g dimasukkan ke dalam campuran etanol dan aquadest, dimana etanol yang digunakan 160 mL dan air yang digunakan 40 mL, pada proses sol-gel sol yang nantinya dihasilkan akan stabil dalam pelarut etanol atau toluen atau dalam campuran etanol-toluen, kemudian ditambahkan TEOS sebagai prekursor silika dengan variasi 1 mL, 2 mL dan 3 mL kemudian larutan ammonium hidroksida sebagai katalis. Pengadukan dilakukan selama ± 18 jam untuk memastikan bahwa semua magnetit telah terlapisi sempurna oleh silika.

Setelah terbentuk gel, maka gel tersebut didiamkan selama 6 jam. Terbentuknya fasa gel menandakan bahwa telah terjadi beberapa ikatan dan interaksi yang terjadi pada magnetit dan silika, yaitu terbentuknya ikatan kovalen Fe-O-Si dan ikatan hidrogen antara gugus silanol pada lapisan silika yang melapisi magnetit, yang diperkuat oleh data FTIR dimana muncul puncak pada bilangan gelombang spesifik dari ikatan tersebut. Terbentuknya gel juga menandakan bahwa telah terisolasinya logam Fe pada matriks silika.¹

Gel yang terbentuk dipanaskan pada suhu 110°C untuk menghilangkan pelarut. Kemudian dilakukan furnace dengan suhu 200°C selama 2 jam untuk menghilangkan semua zat organik yang ada dan untuk membuka pori pada silika yang melapisi magnetit. Hasil furnace didapatkan powder berwarna hitam akan

tetapi magnetit yang dilapisi oleh silika dengan variasi TEOS 1 mL berwarna hitam dengan sedikit warna merah bata.

4.2 Karakterisasi

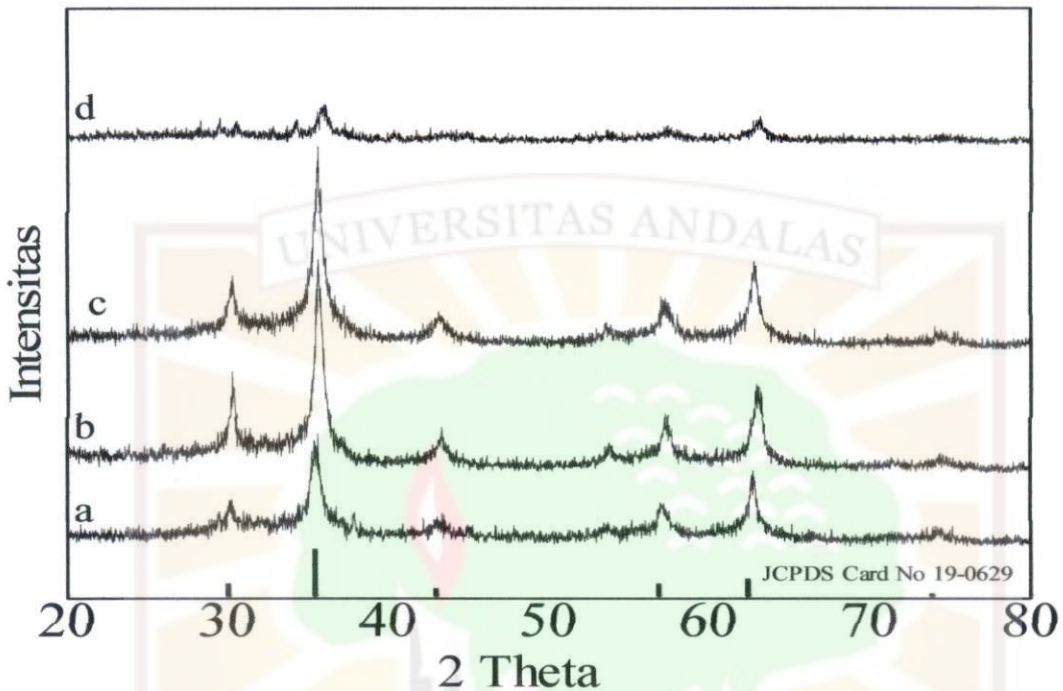
4.2.1 Analisis *Fourier Transform Infra Red Spectroscopy* (FT-IR)

Analisis spektrum (lampiran 7) FT-IR dilakukan untuk melihat terbentuknya ikatan Fe-O-Si serta meningkatnya intensitas dari ikatan Si-O-Si pada setiap perbedaan ketebalan pelapisan oleh silika. Pada magnetit murni terlihat puncak yang tajam pada bilangan gelombang 1384 cm^{-1} yang menunjukkan vibrasi ikatan C-H alkana. Ini memperlihatkan bahwa masih terdapat alkohol yang digunakan sebagai pelarut. Puncak O-H ulur yang muncul pada magnetit yang telah dilapisi oleh silika pada bilangan gelombang 3460 cm^{-1} menandakan adanya gugus silanol yang terdapat pada permukaan silika, sedangkan gugus O-H pada magnetit murni disebabkan karena sifatnya yang higroskopis sehingga dapat menarik air dari udara dan ikatan Fe-O ulur muncul pada bilangan gelombang 467 cm^{-1} dan 578 cm^{-1} . Keberhasilan pelapisan dapat dilihat dengan munculnya puncak yang melebar pada bilangan gelombang 1024 cm^{-1} yang menandakan ikatan Fe-O-Si dan Si-O-Si. Kenaikan intensitas puncak pada bilangan gelombang 1024 cm^{-1} disebabkan perbedaan jumlah silika yang melapisi magnetit tersebut dimana makin besar jumlah silika yang melapisi magnetit tersebut maka intensitasnya akan semakin tinggi

4.2.2 Analisis *X-Ray Diffraction* (XRD)

Analisis XRD digunakan untuk mengetahui susunan atom-atom dalam suatu material kristalin sehingga akan diketahui struktur, orientasi, dan ukuran partikel. Difraksi sinar-X juga dapat memberikan informasi mengenai ukuran kristal. Ukuran kristal ini bisa diketahui dengan menggunakan metoda Scherrer, dimana puncak yang tajam dengan lebar puncak yang sempit menandakan bahwa ukuran kristal besar, sedangkan puncak yang mengalami pelebaran menandakan ukuran kristal kecil. Dengan mengukur FWHM (Full Width at Half Maximum) dari puncak refleksi tertinggi, dapat diperoleh ukuran kristal. Pada Gambar 6 menunjukkan hasil XRD dari Fe_3O_4 sebelum di *coating* dengan menggunakan

SiO₂ dan Fe₃O₄ yang telah di *coating* dengan menggunakan SiO₂, 1 mL, 2 mL dan 3 mL.



Gambar 6. Pola XRD a) Fe₃O₄ ; b) Fe₃O₄/ SiO₂ 1mL; c) Fe₃O₄/ SiO₂ 2mL; dan d) Fe₃O₄/ SiO₂ 3mL

Keberhasilan pelapisan silika pada permukaan magnetit ditandai dengan menurunnya intensitas dari setiap variasi jumlah TEOS sebagai prekursor silika yang ditambahkan. Keberhasilan ini juga didukung dengan menyempitnya puncak yang dihasilkan dimana FWHM dari setiap variasi TEOS yang ditambahkan mengakibatkan bertambahnya ukuran partikel yang didapat (tabel 1).

Pelapisan silika pada permukaan magnetit tidak merubah struktur spinel dari magnetit itu sendiri yang dibuktikan dengan pola difraksi sinar X (XRD) tidak berubah dimana puncak tertinggi dari hasil yang didapat (tabel 1) sesuai dengan standar JCPDS (*Joint Committee for Powder Diffraction Studies*) card no 19-0629. Akan tetapi pada pelapisan dengan menggunakan 1 mL TEOS diindikasikan telah terjadi sedikit oksidasi yang terjadi pada saat pemanasan yang mengakibatkan berubahnya magnetit menjadi maghemit (γ -Fe₂O₃) dimana

berubahnya warna dari hasil yang didapat yaitu merah bata yang berbeda jika dibandingkan dengan warna alami dari magnetit yang hitam.

Kristalinitas dari nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ sangat bergantung pada jumlah silika yang melapisi magnetit tersebut. Pada penambahan 1 mL TEOS sebagai sumber silika kristalinitas dari partikel yang didapat baik dimana tingginya intensitas dari kristal yang didapat, akan tetapi kestabilan partikel tersebut kurang baik karena masih mudah dipengaruhi oleh lingkungan dimana pada saat pemanasan pada suhu 200°C partikel tersebut telah mengindikasikan perubahan komposisi, dimana magnetit yang mempunyai struktur spinel dengan 2 bilangan oksidasi Fe diperkirakan Fe dengan bilangan oksidasi +2 teroksidasi menjadi +3.

Pada penambahan 2 mL intensitas pada pola XRD sedikit menurun yang disebabkan permukaan kristal dari magnetit telah ditutupi oleh silika yang bersifat amorf. Kestabilan dari pelapisan menggunakan 2 mL TEOS dapat dikatakan baik karena tahan terhadap pemanasan dimana tidak terjadi perubahan struktur dari partikel hasil yang didapat.

Kristalinitas dari magnetit menurun dengan sangat drastis pada pelapisan silika dengan menggunakan 3 mL TEOS, ini disebabkan karena tebalnya silika yang melapisi magnetit tersebut sehingga dapat dikatakan hasil yang didapatkan pada pelapisan ini mempunyai kristalinitas yang buruk.

Keberhasilan pelapisan oleh silika bisa juga dilihat dari besar kristal yang didapat, karena makin banyak TEOS yang dipakai dalam pelapisan maka semakin besar ukuran kristal yang akan didapat. Pada pelapisan menggunakan 1 mL TEOS didapat ukuran kristal sebesar 11,16 nm, pada pelapisan 2 mL TEOS didapat ukuran kristal sebesar 12,69 nm, dan ada pelapisan menggunakan 3 mL TEOS didapat ukuran Kristal sebesar 17,05 nm.

Ukuran dari hasil yang didapat menunjang target pada penelitian ini dimana magnetit yang ukuran kristalnya kecil dari 30 nm akan memperlihatkan sifat superparamagnetik. Magnetit yang mempunyai ukuran lebih besar dari 30 nm akan mulai kehilangan sifat superparamagnetiknya dikarenakan mulai hilangnya *single domain* yang menjadi alasan utama nanopartikel magnetit mempunyai sifat magnet yang baik.

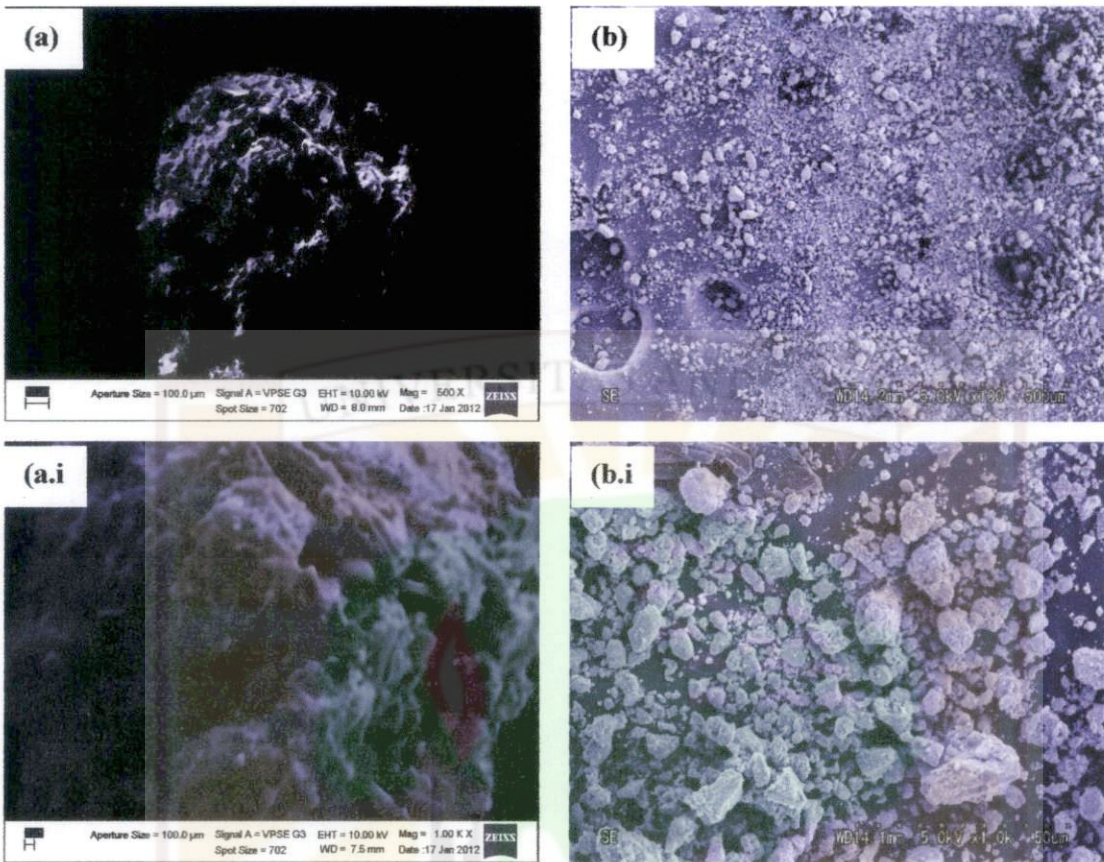
Tabel 1. Ukuran Kristal Fe₃O₄ dengan variasi jumlah penambahan TEOS

TEOS	2θ (°)	FWHM (°)	Ukuran Kristal (nm)
-	35,64	0,91	9,14
1 mL	35,64	0,74	11,16
2 mL	35,56	0,65	12,69
3 mL	35,98	0,48	17,05

4.2.3 Analisis *Scanning Electron Microscopy* (SEM)

Analisis mikrostruktur dari Fe₃O₄ dan Fe₃O₄/SiO₂ yang dihasilkan dilakukan dengan SEM bertujuan untuk melihat morfologi permukaan sampel. Karakterisasi dilakukan dengan cara menembaki permukaan sampel dengan elektron. Pada dasarnya, analisis permukaan melibatkan radiasi permukaan dengan sumber energi (foton, elektron, atau ion) yang cukup untuk menembus dan menimbulkan beberapa transisi yang menghasilkan emisi dari permukaan berkas energi yang bisa dianalisis.

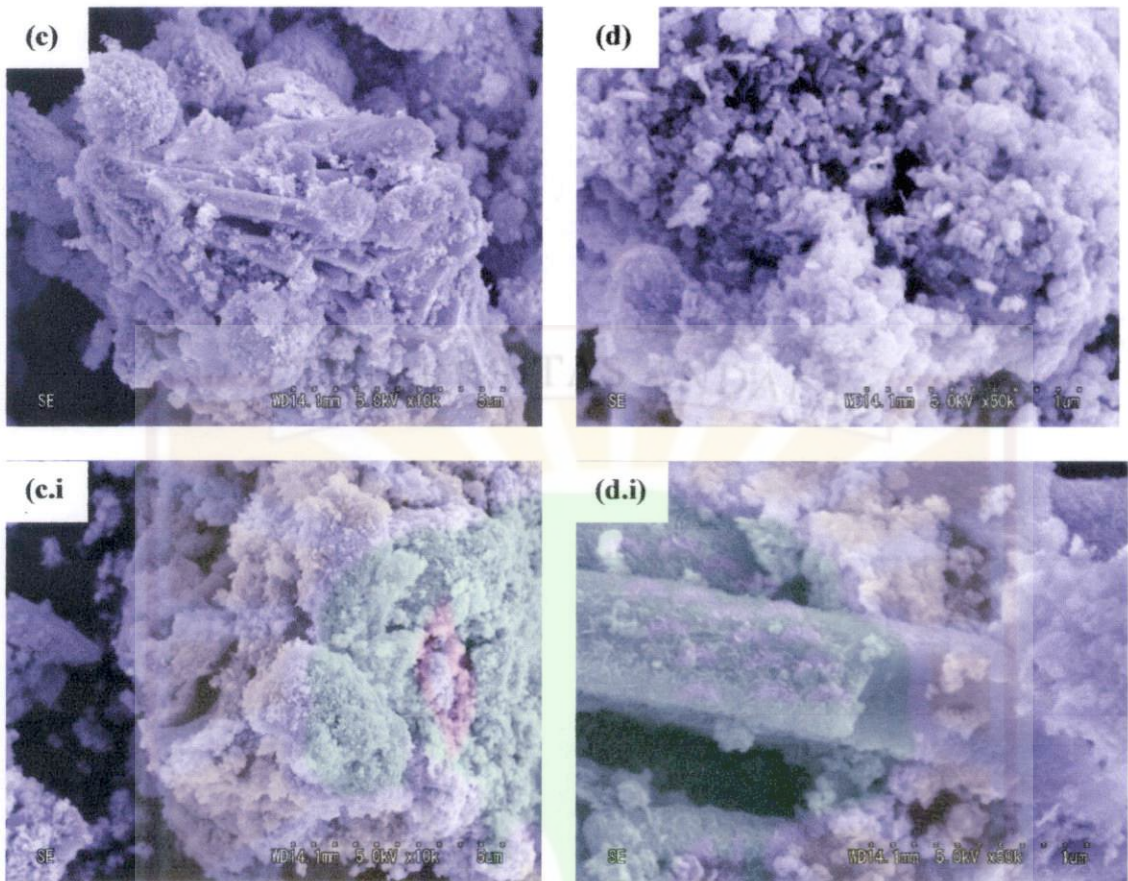
Penggunaan pelarut alkohol selama proses sangat mempengaruhi morfologi dari hasil yang didapat, dimana makin tidak polar pelarut alkohol yang digunakan maka hasil yang didapat tidak mempunyai kehomogenan yang baik, akan tetapi apabila digunakan pelarut alkohol yang sangat polar maka akan terbentuk partikel silika bebas yang mengakibatkan adanya permukaan magnetit yang tidak terlapisi. Urutan kepolaran alkohol yang biasa digunakan pada metoda sol-gel adalah metanol-etanol-propanol-isopropanol.⁸



Gambar 7. Foto SEM pada permukaan sampel (a) Fe_3O_4 500x (b) $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL 100x (a.i) Fe_3O_4 1000x (b.i) $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL 1000x

Dapat dilihat pada magnetit (Fe_3O_4) murni (a dan a.i) telah terjadi aglomerasi dimana terbentuk suatu bongkahan besar akibat kuatnya daya tarik dan besarnya energi permukaan dari magnetit nanopartikel tersebut. Pada pada nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL (b dan b.i) terbentuk partikel dengan bentuk dan ukuran yang lebih seragam dengan tidak terjadinya aglomerasi yang disebabkan pelapisan oleh silika yang menjadikannya lebih stabil.

Selain tidak terjadinya aglomerasi, keberhasilan pelapisan oleh silika dapat dibuktikan apabila dilakukan pengamatan pada nanokomposit yang terbentuk dengan perbesaran 10000x dan 50000x dimana terlihat adanya partikel yang melapisi permukaan magnetit.



Gambar 8. Foto SEM $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL (c), 10000x (c.i), 10000x (d) 50000x dan (d.i) 100000x

Pada $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL dengan perbesaran 10000x (c dan c.i) dapat dilihat bahwa pelapisan oleh silika telah terjadi pada permukaan magnetit, akan tetapi pada perbesaran 50000x terlihat bahwa pelapisan yang terjadi tidak sepenuhnya merata dimana pada beberapa sisi terlihat permukaan magnetit yang tidak terlapisi, ini diindikasikan bahwa pada saat proses pelapisan yang menggunakan *hot plate magnetic stirrer* untuk menghomogenkan larutan, terjadi tarik menarik antara magnetit dengan *magnetic bar* yang digunakan sehingga terdapat beberapa sisi dari magnetit yang tidak berinteraksi dengan TEOS sebagai prekursor silika pada larutan.

Pada penelitian ini digunakan pelarut etanol yang digunakan karena etanol merupakan pelarut paling ideal untuk digunakan pada proses sol-gel yang dilakukan pada penelitian ini. Ini juga ditunjang dengan penggunaan besar volume dari katalis yang digunakan, apabila katalis yang digunakan terlalu banyak maka proses yang terjadi akan sangat cepat sehingga silika yang seharusnya melapisi

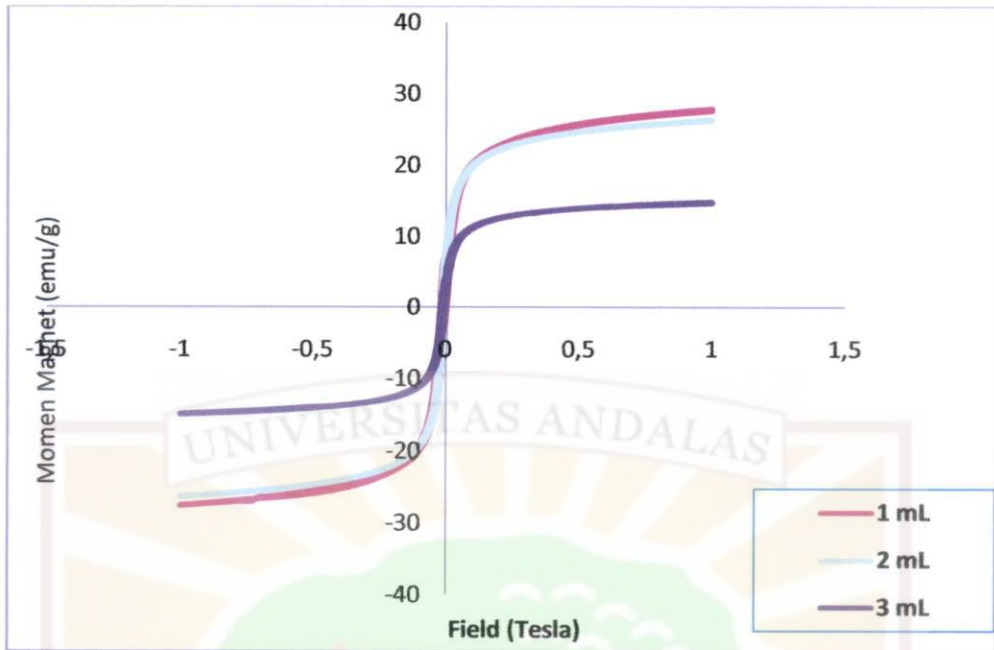
magnetit akan membentuk partikel silika bebas dan tidak mempunyai waktu yang cukup untuk melapisi magnetit partikel secara sempurna.⁸

Penggunaan perbandingan etanol/air yang digunakan selama proses ini juga harus diperhatikan karena jika menggunakan terlalu banyak air maka reaksi hidrolisis dan kondensasi akan berlangsung cepat sehingga pelapisan tidak akan sempurna dan jika menggunakan terlalu banyak menggunakan etanol maka pelapisan tidak akan terjadi dan juga nantinya akan mengakibatkan terjadinya aglomerasi selama proses pelapisan.

4.2.4 Analisis *Vibrating Sample Magnetometer* (VSM)

Kejenuhan magnetisasi (*saturation magnetization* (M_s)) berdasarkan pada Gambar 11, untuk pelapisan menggunakan 1 mL TEOS adalah 27.7 emu/g dengan nilai *remanent* 8.22 emu/g, kejenuhan magnetisasi (M_s) pelapisan 2 mL TEOS adalah 26.4 emu/g dengan nilai *remanent* 9.77 emu/g dan kejenuhan magnetisasi (M_s) pelapisan 3 mL TEOS adalah 14.9 emu/g dengan nilai *remanent* 5.91 emu/g. Kurva histeresis untuk semua sampel memperlihatkan perbedaan yang kecil antara kuat medan pada “remanent” dan “coercivenya”. Berdasarkan data ini dapat disimpulkan bahwa material yang dihasilkan bersifat superparamagnetik.

Kemagnetan Fe_3O_4 berhubungan dengan keberadaan Fe^{2+} dalam strukturnya. Fe_3O_4 memiliki struktur spinel terbalik. Setengah jumlah ion Fe^{3+} menempati rongga tetrahedral (posisi A) dalam struktur spinel. Setengah Fe^{3+} sisanya dan Fe^{2+} menempati rongga oktahedral (posisi B). Berdasarkan teori ferrimagnetisme, arah momen magnet berbagai ion yang menempati tipe posisi yang sama adalah sama. Dalam kasus ini, arah momen magnet posisi A berlawanan dengan posisi B, dan momen magnet total ditentukan dari jumlah vektor momen magnet kedua jenis ion magnetik tersebut. Sebagai hasilnya, peningkatan momen magnet total dari magnetit bergantung kepada jumlah ion Fe^{2+} dalam kisi kristal.



Gambar 9. *Hysteresis loop* nanopartikel magnetit dengan beberapa variasi penambahan TEOS

Nilai M_s magnetit telah dilapisi silika pada pelapisan 2 mL menurun apabila dibandingkan dengan pelapisan 1 mL dimana ini menandakan bahwa ketebalan pelapisan oleh silika mengurangi kekuatan magnet. Data ini dapat disimpulkan bahwa pelapisan telah berhasil dilakukan dimana kekuatan magnet dari magnetit diredam oleh adanya silika yang melapisinya.

Dalam kasus pelapisan menggunakan 3 mL TEOS sifat magnet dari magnetit berkurang drastis dimana kekuatan magnet tersebut diredam oleh tebalnya silika yang melapisinya yang dibuktikan dengan bertambah besarnya partikel yang dihasilkan, pada tabel 2 memperlihatkan hubungan antara ketebalan pelapisan terhadap besar partikel dan kekuatan magnet.

Tabel 2. Hubungan antara ketebalan pelapisan terhadap ukuran partikel dan kekuatan magnet

Sampel	Ukuran Kristal (nm)	Kejenuhan Magnetisasi (emu/g)
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 1 mL	11.16	27.7
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 2 mL	12.69	26.4
$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL	17.05	14.9

Dari data yang didapat juga dapat disimpulkan bahwa material yang terbentuk termasuk dalam golongan *soft* magnet yang cepat menangkap medan magnet dari luar dan cepat juga melepaskannya dimana nilai semua material yang terbentuk mempunyai nilai *remanent* yang kecil. Momen-momen magnetik muncul akibat ketidakseimbangan magnetik sub-kisi dalam nanomaterial yang terdiri dari beberapa atom magnetik atau gangguan terhadap lapisan-lapisan permukaan atomik yang terdiri dari atom-atom yang mempunyai orientasi spin sama. Sifat-sifat magnetik seperti kejenuhan magnetisasi, *hysteresis*, *remanent*, dan *coercive* menunjukkan ketergantungan yang kuat terhadap ukuran butiran karena pengaruh kondisi domain magnetik sampel pada berbagai ukuran butiran. Kondisi domain yang berubah dari domain tunggal ke multidomain karena ukuran butiran yang meningkat akan menghilangkan sifat superparamagnetik suatu partikel.



V. KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil yang diperoleh, dapat diambil beberapa kesimpulan, yaitu :

1. Kestabilan dari nanopartikel magnetit meningkat dengan pelapisan oleh silika yang ditandai dengan minimalnya aglomerasi yang terjadi pada nanopartikel magnetit tersebut
2. Ketebalan pelapisan meningkatkan kestabilan magnetit tersebut, dimana pada pelapisan 1 mL silika kestabilan yang masih kurang dikarenakan tipisnya silika, makin tebal silika yang melapisi magnetit maka makin stabil senyawa yang terbentuk akan tetapi berbanding terbalik dengan sifat magnetnya.
3. Pembentukan dari nanokomposit kulit-inti $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ terjadi melalui proses hidrolisis dan kondensasi sehingga membentuk jaringan ikatan Fe-O-Si yang ditandai dengan terbentuknya gel pada metoda sol-gel yang ditunjang dengan munculnya puncak FTIR pada bilangan gelombang 1024 cm^{-1} yang menandakan ikatan Fe-O-Si dan Si-O-Si.

5.2 Saran

Bagi peneliti selanjutnya disarankan untuk :

1. Mempelajari lebih lanjut penggunaan reduktor lainnya untuk pembuatan Fe_3O_4 sehingga nantinya dapat dihasilkan kristal Fe_3O_4 dengan sifat magnet yang lebih baik.
2. Menggunakan alat yang tidak memiliki sifat magnet pada proses pelapisan sehingga didapat magnetit yang terlapisi sempurna oleh silika
3. Mempelajari pengaruh lingkungan, jumlah zat yang digunakan serta prekursor yang dipakai, sehingga didapat hasil yang lebih maksimal dan bisa diaplikasikan dalam industri.

DAFTAR PUSTAKA

1. A.L.Andrade, D.M Souza, M. C. Pereira, J. D Fabris, R. Z Domigues. Synthesis and Characterization of Magnetic Nanoparticles Coated with Silica Through a Sol-Gel Approach. Departamento de Quimica. Unversidade de Minas Gerais. *Ceramica*. 2009. 55 420-424.
2. M.A. Gonzalez-Fernandez, T.E. Torres, M. Andres-Verges, R. Costo, P. de la Presa, C.J. Serna, M.P. Morales, C. Marquina, M.R. Ibarra, G.F. Goya. Magnetic nanoparticles for power absorption: Optimizing size, shape and magnetic properties. *Journal of Solid State Chemistry*. 2009. 182 2779–2784.
3. Jana Chomoucka, Jana Drbohlavova, Dalibor Huska, Vojtech Adam, Rene Kizek, Jaromir Hubalek. Magnetic nanoparticles and targeted drug delivering. *Pharmacological Research*. 2010. 62 144–149.
4. Y.H. Lien, S.H. Hu, T.M. Wu. *The Application of Multi-functional Nanoparticles in Drug Delivery System*. Department of Materials Science and Engineering. National Chung Hsing University: Taiwan. Report.
5. J Lodhia, G Mandarano, NJ, P Eu, SF Cowell. Development and use of iron oxide nanoparticles (Part 1): Synthesis of iron oxide nanoparticles for MRI. *Biomedical Imaging and Intervention Journal*. 2010. 6(2):e(12).
6. Swadeshmukul Santra, Rovelyn Tapeç Nikoleta Theodoropoulou, Jon Dobson, Arthur Hebard, and Weihong Tan. 2001. Synthesis and Characterization of Silica-Coated Iron Oxide Nanoparticles in Microemulsion: The Effect of Nonionic Surfactants. *Langmuir*. 2001. 17(10) : 2900-2906.
7. Yen-Ling Tsai, Chia-Hua Chun, Jinn-Luh Ou, Chih-Kai Huang, Chii-Chang Chen. Magnetic Fe₃O₄ nanoparticles synthesized for preparations of silica-coated composites. *Desalination*. 2006. 200 97–99.
8. Yong-Hui Deng, Chang-Chun Wang, Jian-Hua Hu, Wu-Li Yang, Shou-Kuan Fu. Investigation of Formation of Silica-coated magnetite nanoparticles via sol-gel approach. *Colloids and Surface A : Physicochem. Eng. Aspects*. 2005. 262 87-93.
9. Anonym. 2009. *Substance Profile for the Challenge: Hydrazine*, Chemical Abstracts Service Registry Number 302-01-2.

10. P. P. Ahonen, E. I. Kauppinen, J. L. Deschanvres, J. C. Joubert. Preparation of Nanocrystalline Titania Powder by Aerosol Pyrolysis of Titanium Alkoxide. *Materials Research Society*. 1998. 520.
11. Xiangxin Yang. Sol-Gel Synthesized Nanomaterials for Environmental Applications. *K-State Electronic Theses Dissertations and Reports*. 2009. 2299.
12. L. Amelao, D. Barreca, G. Bottaro. *Chem Matter*. 2005.17 : 1450-1456.
13. Yongka Sun, Lei Duan, Zhirui Guo, Yun Duanmu, Ming Ma, Lina Xu, Yu Zhang, Ning Gu. An improved way to prepare superparamagnetic magnetite-silica core-shell nanoparticles for possible biological application. *Journal of Magnetism and Magnetic Material*. 2005. 285 65-70.
14. Gnanaprakash,G;Mahadevan,S;Jayakumar,T;Kalyanasundaram,P;Philip,Jhon; Raj,Baldev. Effect of initial PH and temperature of iron salt solutions on formation of magnetite nanoparticles. *Journal of Materials Chemsitry and Physics*. 2007. 103 : 168-175.
15. D. Gingasu, I. Mindru, L.A. Patron J.M. Calderon-Moreno,L.Diamandescu, F.Tuna, T. Popescu. 2011. Investigation Of Magnetite Formation In The Presence Of Hydrazine Hydrochloride. *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*. 2011. 6 1065-1072.
16. Shen,Y.F. , J. Tang, Z.H. Nie, Y.D.Wang, Y. Ren, L. Zuo. Preparation and application of magnetic Fe₃O₄ nanoparticles for wastewater purification. *Separation and Purification Technology*. 2009. 68 312–319.
17. Ladelta,Viko;Arief Syukri;Darajat Syukri. Proceeding Seminar: The First International Seminar on Science and Technology. *Effect of Reductants on The Synthesis of Magnetite Nanoparticles from Iron Ores of Sungai Lasi Kabupaten Solok*. Bukittinggi. 2009. 14-18.

Lampiran 1. Dasar-dasar Perhitungan yang Digunakan dalam Penelitian

Pada penelitian ini perbandingan mol yang digunakan adalah Fe : Hidrazin adalah 5 : 3 : $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ sebanyak 0,05 mol direaksikan dengan 0,03 mol hidrazin.

Pembuatan larutan Fe^{3+} 0,05 mol

a. Massa $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 0,05 mol

Massa $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$

$$= 0,05 \text{ mol} \times \frac{403,847 \text{ g}}{1 \text{ mol}} = 20,19 \text{ g}$$

b. Volume hidrazin 0,02 mol

Massa hidrazin

$$= 0,02 \text{ mol} \times \frac{50,06 \text{ g}}{1 \text{ mol}} = 1,0012 \text{ g}$$

Volume hidrazin

$$= \frac{1,0012 \text{ g}}{1,032 \frac{\text{g}}{\text{mL}}} = 0,97 \text{ mL}$$

c. TEOS 1 mL

Massa TEOS

$$= 1 \text{ mL} \times 0,94 \frac{\text{g}}{\text{mL}} = 0,94 \text{ g}$$

Mol TEOS

$$= 0,94 \text{ g} \times \frac{1 \text{ mol}}{208,33 \text{ g}} = 0,005 \text{ mol}$$

d. TEOS 2 mL

Massa TEOS

$$2 \text{ mL} \times 0,94 \frac{\text{g}}{\text{mL}} = 1,88 \text{ g}$$

Mol TEOS

$$= 1,88 \text{ g} \times \frac{1 \text{ mol}}{208,33 \text{ g}} = 0,009 \text{ mol}$$

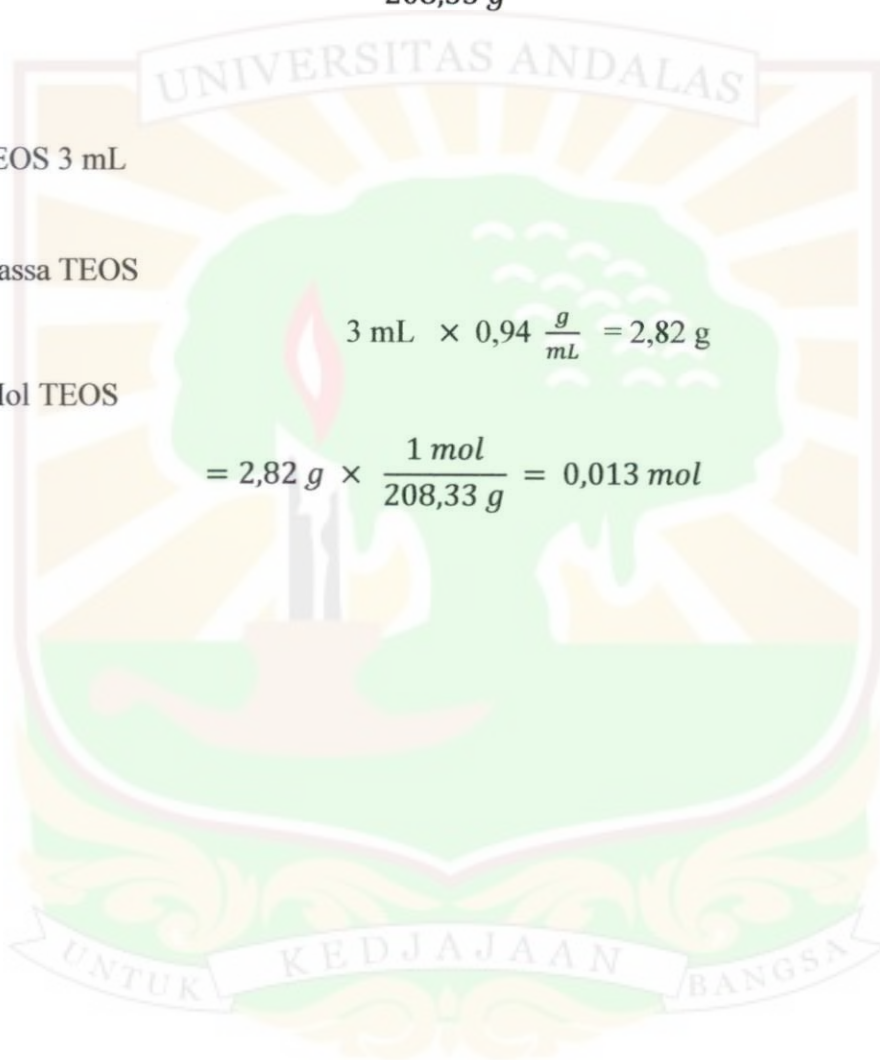
e. TEOS 3 mL

Massa TEOS

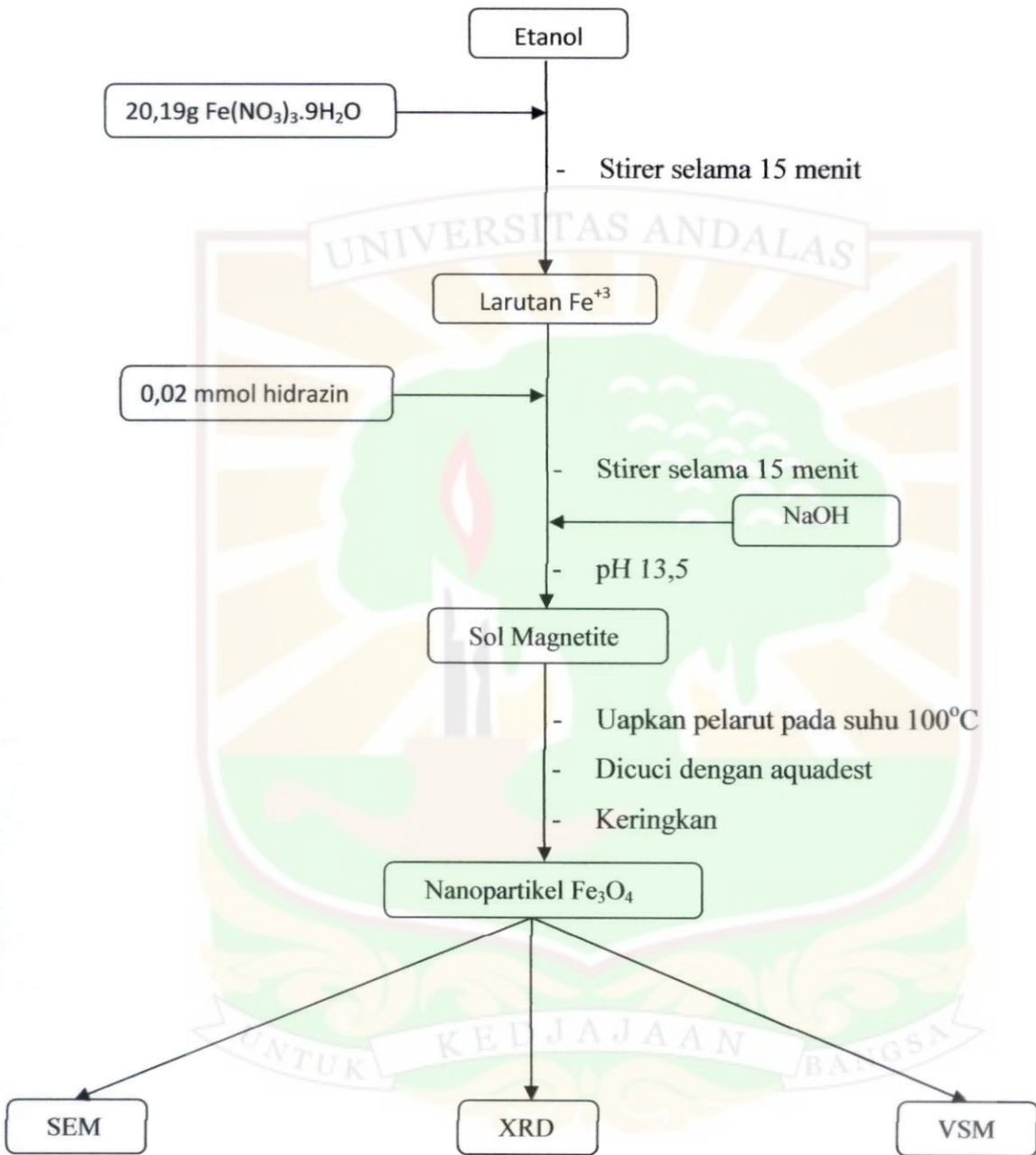
$$3 \text{ mL} \times 0,94 \frac{\text{g}}{\text{mL}} = 2,82 \text{ g}$$

Mol TEOS

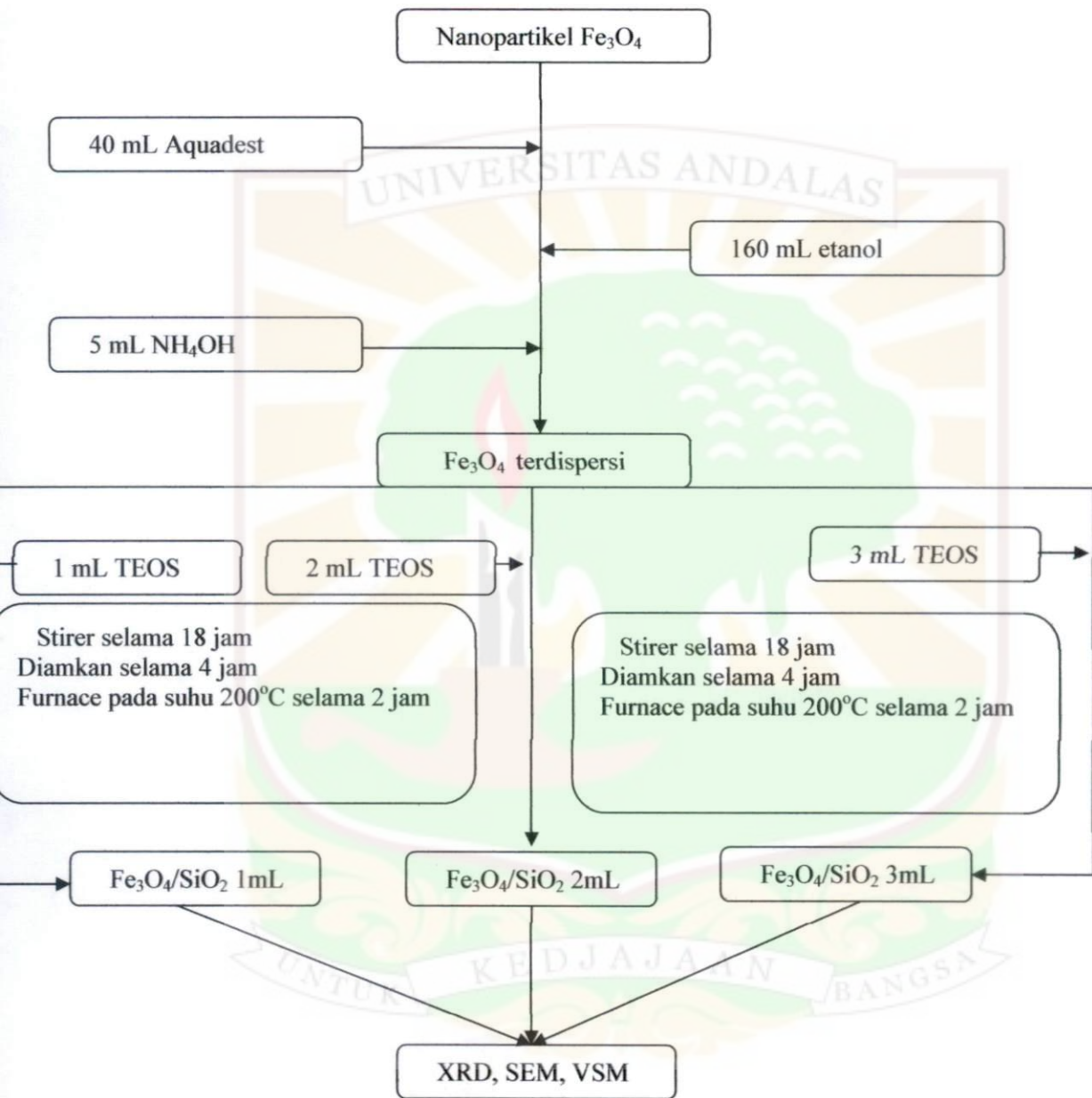
$$= 2,82 \text{ g} \times \frac{1 \text{ mol}}{208,33 \text{ g}} = 0,013 \text{ mol}$$



Lampiran 2. Skema Kerja Sintesis nanopartikel Magnetite



Lampiran 3 Skelma kerja pelapisan nanopartikel magnetite dengan silika



Lampiran 4. Perhitungan ukuran kristal Fe_3O_4 dengan metoda Scherrer

Rumus Scherrer :

$$L = \frac{K \cdot \lambda}{\beta \cos \theta}$$

Dimana :

L = Ukuran kristal (nm)

K = Konstanta (0,89)

λ = Panjang gelombang sinar-X untuk Cu $K\alpha$ (0,15405 nm)

β = FWHM (*Full Width at Half Maximum*) pada $2\theta \times (\pi/180)$

θ = Sudut Bragg

a. Ukuran Kristal magnetite

$$L = \frac{0,89 \times 0,15405 \text{ nm}}{\left(0,91 \times \frac{3,14}{180}\right) \times \cos(35,64/2)} = 9,14 \text{ nm}$$

b. Ukuran kristal magnetite dengan pelapisan silika 1 mL

$$L = \frac{0,89 \times 0,15405 \text{ nm}}{\left(0,74 \times \frac{3,14}{180}\right) \times \cos(35,64/2)} = 11,16 \text{ nm}$$

c. Ukuran Kristal magnetite dengan pelapisan silika 3 mL

$$L = \frac{0,89 \times 0,15405 \text{ nm}}{\left(0,48 \times \frac{3,14}{180}\right) \times \cos(35,98/2)} = 17,05 \text{ nm}$$

Lampiran 5. Contoh perhitungan ukuran Kristal Fe₃O₄ yang dicoating dengan 3ml TEOS menggunakan metoda Scherrer yang FWHM nya dihitung secara manual

Rumus Scherrer :

$$L = \frac{K \cdot \lambda}{\beta \cos \theta}$$

Dimana :

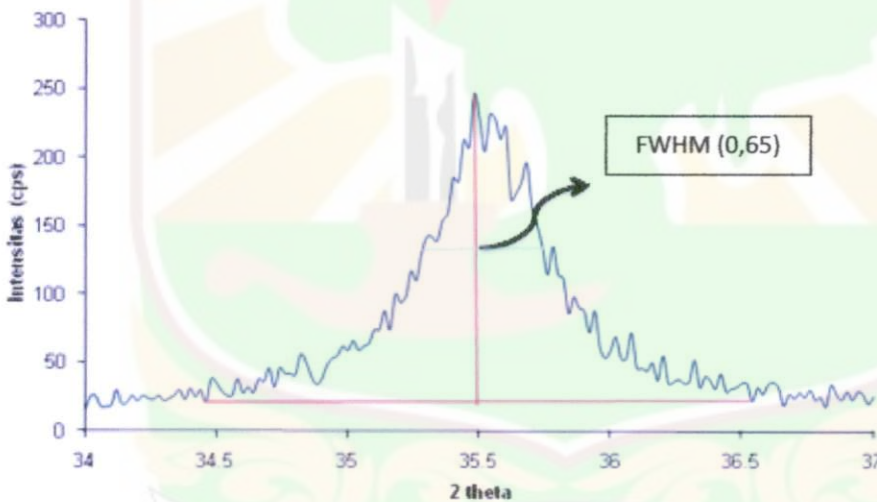
L = Ukuran kristal (nm)

K = Konstanta (0,89)

λ = Panjang gelombang sinar-X untuk Cu Kα (0,15405 nm)

β = FWHM (*Full Width at Half Maximum*) pada 2θ x (π/180)

θ = Sudut Bragg

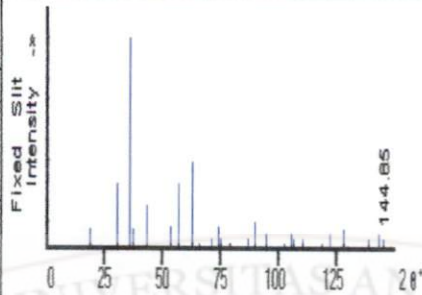


$$L = \frac{0,89 \times 0,15405 \text{ nm}}{(0,65 \times \frac{3,14}{180}) \times \cos(35,56/2)} = 12,69 \text{ nm}$$

Lampiran 6. Data JCPDS No. 19-0629

19-0629 Quality: *
 CAS Number:
 Molecular Weight: 231.54
 Volume[CD]: 591.86
 Dx: 5.197 Dm: 5.176
 S.G.: Fd3m (227)
 Cell Parameters:
 a 8.396 b c
 α β γ
 SS/FOM: F26-58(0132, 34)
 I/mor: 4.90
 Rad: CuK α
 Lambda: 1.54056
 Filter: Ni
 d-sp:
 Mineral Name:
 Magnetite, syn

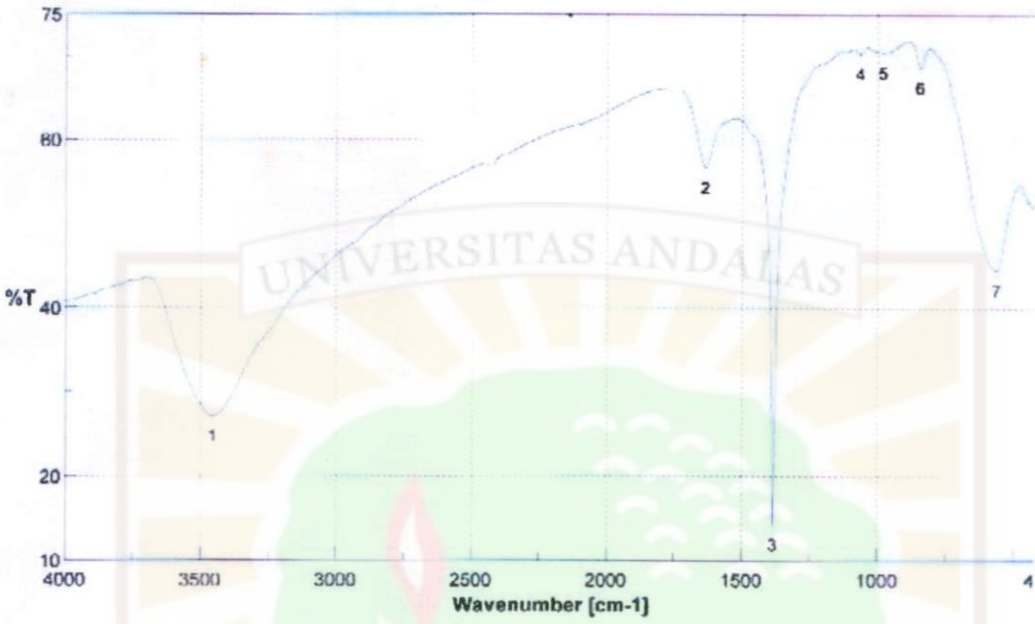
FeFe₂O₄
 Iron Oxide
 Ref. Natl. Bur. Stand. (U.S.) Monogr. 25, 5, 31 (1967)



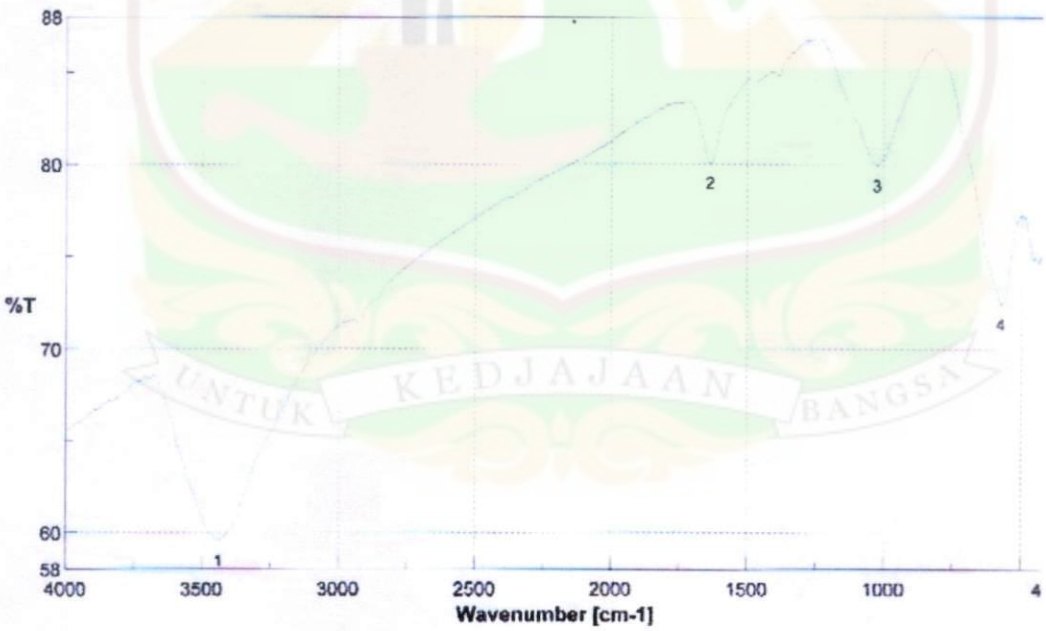
2 θ	Int-I	h	k	l	2 θ	Int-I	h	k	l	2 θ	Int-I	h	k	l
18.269	8	1	1	1	70.924	4	6	2	0	106.20	4	6	6	2
30.095	30	2	2	0	73.948	10	5	3	3	110.26	4	8	4	0
35.422	100	3	1	1	74.960	4	6	2	2	118.73	2	6	6	4
37.052	8	2	2	2	78.929	2	4	4	4	122.11	6	9	3	1
43.052	20	4	0	0	86.702	4	6	4	2	128.03	8	8	4	4
53.391	10	4	2	2	89.617	12	7	3	1	138.65	4	10	2	0
56.942	30	5	1	1	94.425	6	8	0	0	143.23	6	9	5	1
62.515	40	4	4	0	102.22	2	6	6	0	144.84	4	10	2	2
65.743	2	5	3	1	105.21	6	7	5	1					

Lampiran 7. Spektrum FTIR

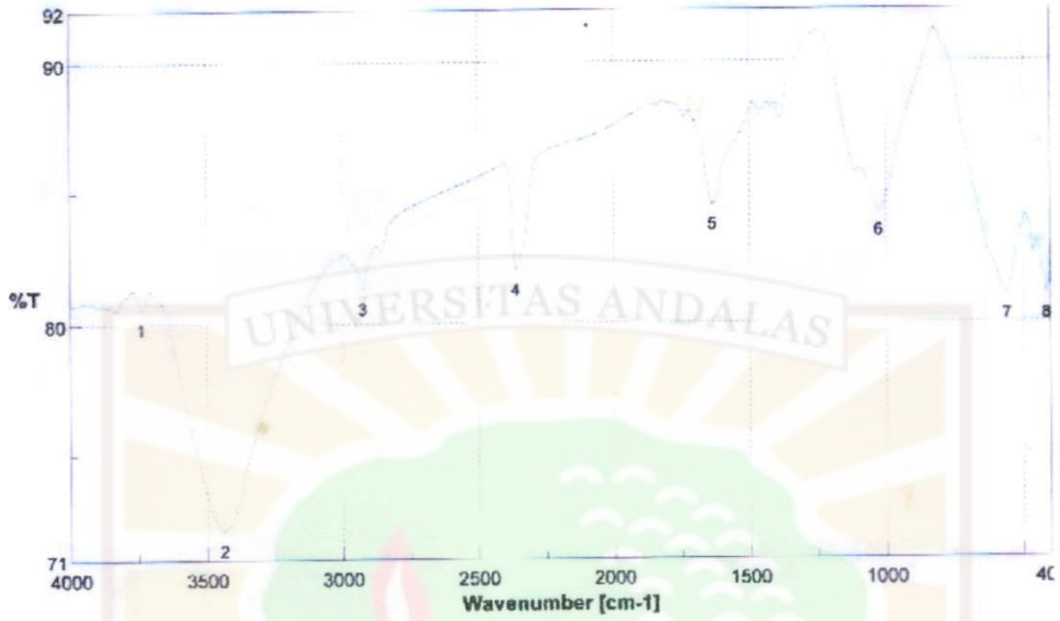
a. Magnetit



b. Fe₃O₄/SiO₂ 1 mL



c. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 2 mL



d. $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ 3 mL

