

TUGAS AKHIR – TL184834

INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR ANNEALING PADA SINTESIS PARTIKEL Fe_3O_4 TERHADAP MORFOLOGI, LUAS PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE KOPRESIPITASI

JEFFRY KURNIAWAN
NRP. 02511840000109

Dosen Pembimbing
Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.
NIP. 197801132002121003
Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.
NIP. 1992202012023

Program Studi Teknik Material
Departemen Teknik Material dan Metalurgi
Fakultas Teknologi Industri dan Rekayasa Sistem
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2022



TUGAS AKHIR – TL184834

INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR ANNEALING PADA SINTESIS PARTIKEL Fe_3O_4 TERHADAP MORFOLOGI, LUAS PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE KOPRESIPITASI

JEFFRY KURNIAWAN
NRP. 02511840000109

Dosen Pembimbing
Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.
NIP. 197801132002121003
Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.
NIP. 1992202012023

Program Studi Teknik Material
Departemen Teknik Material dan Metalurgi
Fakultas Teknologi Industri dan Rekayasa Sistem
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2022

(Halaman ini sengaja dikosongkan)



FINAL PROJECT – TL184834

INVESTIGATION OF DIETHYLAMINE ADDITION AND ANNEALING TEMPERATURE EFFECTS ON Fe_3O_4 PARTICLES PREPARATION ON MORPHOLOGY, SURFACE AREA, AND MAGNETIC PROPERTIES USING COPRECIPITATION METHOD

JEFFRY KURNIAWAN
NRP. 02511840000109

Advisor

Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.

NIP. 197801132002121003

Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.

NIP. 1992202012023

Study Program of Materials Engineering
Departement of Materials and Metallurgical Engineering
Faculty of Industrial Technology and Systems Engineering
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya
2022

(This page is intentionally blank)

LEMBAR PENGESAHAN

INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR ANNEALING PADA SINTESIS PARTIKEL Fe_3O_4 TERHADAP MORFOLOGI, LUAS PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE KOPRESIPITASI

TUGAS AKHIR

Diajukan untuk memenuhi salah satu syarat
memperoleh gelar Sarjana Teknik pada
Program Studi S-1 Teknik Material
Departemen Teknik Material dan Metalurgi
Fakultas Teknologi Industri dan Rekayasa Sistem
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh : **JEFFRY KURNIAWAN**
NRP. 02511840000109

Disetujui oleh Tim Penguji Tugas Akhir :

1. Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.



Pembimbing

2. Azzah Dyah Pratama, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.

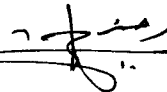


Ko-Pembimbing

3. Prof. Dr. Ir. Sulistijono, DEA.

Penguji

4. Tubagus Noor Rohmannudin, S.T., M.Sc.



Penguji

SURABAYA
Juli, 2022

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

APPROVAL SHEET




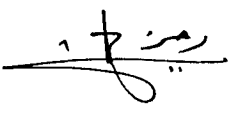
INVESTIGATION OF DIETHYLAMINE ADDITION AND ANNEALING TEMPERATURE EFFECTS ON Fe_3O_4 PARTICLES PREPARATION ON MORPHOLOGY, SURFACE AREA, AND MAGNETIC PROPERTIES USING COPRECIPITATION METHOD

FINAL PROJECT

Submitted to fulfill one of the requirements
for obtaining a degree of bachelor of engineering at
Undergraduate Study Program of Materials Engineering
Departement of Materials and Metallurgical Engineering
Faculty of Industrial Technology and Systems Engineering
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

By : **JEFFRY KURNIAWAN**
NRP. 02511840000109

Approved by Final Project Examiner Team :

- | | | |
|---|--|------------|
| 1. Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D. |  | Advisor |
| 2. Azzah Dyah Pratama S.T., M.T., M.Eng., Ph.D. |  | Co-Advisor |
| 3. Prof. Dr. Ir. Sulistijono, DEA. |  | Examiner |
| 4. Tubagus Noor Rohmannudin, S.T., M.Sc. |  | Examiner |

SURABAYA
July, 2022

(This page is intentionally blank)

PERNYATAAN ORISINALITAS

Yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama mahasiswa/NRP : Jeffry Kurniawan/02511840000109
Departemen : Teknik Material dan Metalurgi
Dosen Pembimbing/NIP : Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D./197801132002121003

Dengan ini menyatakan bahwa Tugas Akhir dengan judul “INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR ANNEALING PADA SINTESIS PARTIKEL Fe_3O_4 TERHADAP MORFOLOGI, LUAS PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE KOPRESIPITASI” adalah hasil karya sendiri, bersifat orisinal, dan ditulis dengan mengikuti kaidah penulisan ilmiah.

Bilamana di kemudian hari ditemukan ketidaksesuaian dengan pernyataan ini, maka saya bersedia menerima sanksi sesuai dengan ketentuan yang berlaku di Institut Teknologi Sepuluh Nopember.

Surabaya, 18 Juli 2022

Mengetahui
Dosen Pembimbing



(Sigit T. Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.)
NIP. 197801132002121003

Mahasiswa



(Jeffry Kurniawan)
NRP. 02511840000109

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

STATEMENT OF ORIGINALITY

The undersigned below:

Name of student/NRP : Jeffry Kurniawan/02511840000109
Departement : Materials and Metallurgical Engineering
Advisor/NIP : Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D./197801132002121003

Hereby declare that the Final Project with the title of "INVESTIGATION OF DIETHYLAMINE ADDITION AND ANNEALING TEMPERATURE EFFECTS ON Fe_3O_4 PARTICLES PREPARATION ON MORPHOLOGY, SURFACE AREA, AND MAGNETIC PROPERTIES USING COPRECIPITATION METHOD" is the result of my own work, is original, and is written by following the rules of scientific writing..

If in the future there is a discrepancy with this statement, then I am willing to accept sanctions in accordance with the provisions that apply at Institut Teknologi Sepuluh Nopember.

Surabaya, 18 July 2022

Acknowledged
Advisor



(Sigit T. Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.)
NIP. 197801132002121003

Student



(Jeffry Kurniawan)
NRP. 02511840000109

(This page is intentionally blank)

**INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR ANNEALING
PADA SINTESIS PARTIKEL Fe₃O₄ TERHADAP MORFOLOGI, LUAS
PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE
KOPRESIPITASI**

Nama Mahasiswa / NRP : Jeffry Kurniawan / 02511840000109
Departemen : Teknik Material dan Metalurgi FTIRS-ITS
Dosen Pembimbing : Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.
Ko-Pembimbing : Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.

Abstrak

Sintesis nanopartikel Fe₃O₄ dari pasir besi alam menggunakan metode kopresipitasi berhasil dilakukan dengan variasi penambahan DA dan temperatur *annealing*. Eksperimen dilakukan dengan menyiapkan larutan FeCl₃ dari pasir besi alam dan larutan FeCl₂ dari *steelwool* menggunakan HCl. DA ditambahkan sebelum proses netralisasi dengan variasi 0%, 15%, dan 30% (v/v). Endapan dicuci dan di-*anneal* pada temperatur 100 °C dan 150°C untuk mendapatkan serbuk Fe₃O₄. Selanjutnya serbuk diuji menggunakan instrumen XRD menunjukkan *pattern* Fe₃O₄ berdasarkan JCPDS 02-1035. Pengujian EDX menunjukkan kandungan Fe₃O₄ mampu mencapai 99.14% dengan sedikit pengotor. Spektrum *infrared* dari pengujian FTIR menunjukkan sampel hanya memiliki ikatan Fe-O yang berasal dari Fe₃O₄. Ukuran kristal serbuk diestimasi berdasarkan hasil XRD menunjukkan ukuran kristal dalam kisaran 16.49 – 22.26 nm. Berdasarkan hasil SEM ukuran partikel menurun dan menghasilkan partikel *single domain* setelah penambahan DA yaitu dibawah 80 nm dengan bentuk partikel *spheres-like*. Kenaikan temperatur *annealing* cenderung meningkatkan ukuran partikel. Pengujian DLS menunjukkan partikel teraglomerasi setelah proses *annealing* yang disebabkan oleh hilangnya DA. Luas permukaan spesifik meningkat dengan penambahan DA konsisten dengan penurunan ukuran partikelnya. Sedangkan, kenaikan temperatur *annealing* cenderung menurunkan nilai luas permukaan spesifik seiring dengan meningkatnya ukuran partikel. Nilai luas permukaan spesifik berada pada rentang 61.024 – 110.098 m²/g. Selanjutnya, sifat magnetik berhasil diselidiki dengan mengukur magnetisasi saturasi sampel. Penambahan DA mampu meningkatkan nilai *saturation magnetization* mencapai 52.49 emu/g. Selain itu rasio *remanence magnetization* terhadap *saturation magnetization* terkecil dihasilkan oleh fraksi volume DA 30% yang menunjukkan eksistensi DA mengarah pada pembentukan partikel superparamagnetik.

Kata Kunci: Fe₃O₄, MNPs, DA, kopresipitasi

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

**INVESTIGATION OF DIETHYLAMINE ADDITION AND ANNEALING
TEMPERATURE EFFECTS ON Fe₃O₄ PARTICLES PREPARATION ON
MORPHOLOGY, SURFACE AREA, AND MAGNETIC PROPERTIES USING
COPRECIPITATION METHOD**

Student Name / NRP : Jeffry Kurniawan / 02511840000109
Departement : Teknik Material dan Metalurgi FTIRS-ITS
Advisor : Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D.
Co-Advisor : Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D.

Abstract

The synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles from natural iron sand using the coprecipitation method was successfully carried out with variations in the addition of DA and annealing temperature. Experiments were carried out by preparing a solution of FeCl₃ from natural iron sand and a solution of FeCl₂ from steelwool using HCl. DA was added before the neutralization process with variations of 0%, 15%, and 30% (v/v). The precipitate was washed and annealed at temperatures of 100 °C and 150 °C to obtain Fe₃O₄ powder. Furthermore, the powder was tested using an XRD instrument showing the Fe₃O₄ pattern based on JCPDS 02-1035. The EDX test showed that the Fe₃O₄ content was able to reach 99.14% with a small amount of impurities. The infrared spectrum from the FTIR test showed that the sample only had Fe-O bonds derived from Fe₃O₄. The crystal size of the powder was estimated based on the XRD results showing the crystal size in the range of 16.49 – 22.26 nm. Based on the results of SEM the particle size decreased and produced single domain particles after the addition of DA which was below 80 nm with spheres-like particle shape. The increase in annealing temperature tends to increase the particle size. The DLS test showed that the particles agglomerated after the annealing process caused by the loss of DA. The specific surface area increases with the addition of DA consistent with the decrease in particle size. Meanwhile, the increase in annealing temperature tends to decrease the value of the specific surface area along with the increase in particle size. Specific surface area values are in the range of 61,024 – 110,098 m²/g. Furthermore, the magnetic properties were successfully investigated by measuring the saturation magnetization of the sample. The addition of DA was able to increase the saturation magnetization value to 52.49 emu/g. In addition, the smallest ratio of remanence magnetization to saturation magnetization is produced by the volume fraction of 30% DA which indicates the existence of DA leads to the formation of superparamagnetic particles.

Keywords: *Fe₃O₄, MNPs, DA, coprecipitation*

(This page is intentionally blank)

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur atas kehadiran Tuhan Yang Maha Esa yang telah memberikan rahmat dan karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan penelitian tugas akhir dengan judul, "INVESTIGASI PENGARUH DIETILAMIN DAN TEMPERATUR *ANNEALING* PADA SINTESIS PARTIKEL Fe_3O_4 TERHADAP MORFOLOGI, LUAS PERMUKAAN, DAN SIFAT MAGNETIK MENGGUNAKAN METODE KOPRESIPITASI". terselesaikannya laporan tugas akhir merupakan bagian dari dukungan, bantuan, motivasi serta partisipasi dari semua pihak, untuk itu penulis ingin mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Bapak Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D., dan Ibu Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D., selaku dosen pembimbing atas ilmu, sumber daya, kesabaran, dan arahan yang beliau-beliau terus berikan selama keberjalanannya Tugas Akhir ini.
2. Ibu Amaliya Rasyida S.T., M.Sc., selaku Kepala Laboratorium Material Inovasi yang mengizinkan kami untuk melakukan kegiatan tugas akhir di Labaoratorium Material Inovasi.
3. Ibu Dr. Widyastuti , S.Si., M.Si., selaku dosen wali yang telah membimbing dan memberikan banyak saran baik secara akademik maupun non akademik.
4. Bapak Suprpto, S.Si., M.Si., Ph.D., dan Ibu Winarni selaku Kepala Laboratorium Energi dan Lingkungan ITS dan operator laboratorium yang telah mengizinkan penulis untuk mempelajari instrumen BET demi kelancaran penelitian.
5. Bapak Ridha Widhianto, A.Md, selaku teknisi laboratorium Material Inovasi yang telah banyak membantu urusan teknis terkait pelaksanaan TA.
6. Seluruh dosen Departemen Teknik Material dan Metalurgi FTIRS-ITS atas ilmu yang telah diberikan kepada penulis selama proses perkuliahan.
7. Teman-teman anggota Laboratorium Material Inovasi dan Kimia Material yang telah menemani penulis dalam pengerjaan Tugas Akhir.
8. Semua pihak yang telah berkontribusi dalam proses pengerjaan Tugas Akhir yang tidak bisa penulis ucapkan satu persatu.

Semoga penelitian ini dapat terus memberikan kebermanfaatn bagi kita semua.

Surabaya, 12 Juli 2022



Jeffry Kurniawan

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR ISI

Abstrak	xiii
Abstract	xv
KATA PENGANTAR	xvii
DAFTAR ISI	xix
DAFTAR GAMBAR	xxi
DAFTAR TABEL	xxiii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Perumusan Masalah	2
1.3 Batasan Masalah	2
1.4 Tujuan Penelitian	2
1.5 Manfaat Penelitian	2
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	3
2.1 Nanopartikel Magnetik	3
2.2 Sifat Magnetik	5
2.2.1 <i>Magnetic moment</i> (μ_m)	5
2.2.2 <i>Magnetization</i> (M)	5
2.2.3 <i>Magnetic Susceptibility</i> (χ)	5
2.2.4 Klasifikasi Sifat Magnet	6
2.3 Sifat Magnetik Oksida Besi	10
2.4 <i>Superparamagnetic Iron Oxide Nanoparticles</i> (SPIONs)	11
2.4.1 Stabilitas koloid SPIONs	12
2.4.2 Bentuk, ukuran dan distribusi ukuran	13
2.5 Metode Sintesis SPIONs	13
2.5.1 Metode kopresipitasi	13
2.5.2 Sintesis hidrotermal	14
2.5.3 Sintesis solvotermal	14
2.5.4 <i>Microemulsion</i>	15
2.5.5 Sintesis <i>sonochemical</i>	16
2.6 Penelitian sebelumnya mengenai sintesis nanopartikel Fe ₃ O ₄	17
BAB III METODOLOGI PENELITIAN	21
3.1 Diagram Alir	21
3.2 Bahan Penelitian	21
3.3 Alat Penelitian	22
3.4 Metode Penelitian	22
3.4.1 Ekstraksi material magnetik dari pasir besi alam	22
3.4.2 Membuat larutan FeCl ₃ dan FeCl ₂	22
3.4.3 <i>Nano-sizing</i> (titrasi)	23
3.5 Pengujian	23
3.5.1 <i>X-Ray Diffractometry</i> (XRD)	23
3.5.2 <i>Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray</i> (SEM-EDX)	24
3.5.3 <i>Dynamic Light Scattering</i> (DLS)	24
3.5.4 <i>Brunauer-Emmett-Teller</i> (BET)	25
3.5.5 <i>Fourier-Transform Infrared Spectroscopy</i> (FTIR)	26
3.5.6 <i>Vibrating-Sample Magnetometer</i> (VSM)	26
3.6 Rancangan Penelitian	27

BAB IV PEMBAHASAN DAN ANALISA DATA.....	29
4.1 Stoikiometri Reaksi.....	29
4.1.1 Menentukan konsentrasi larutan FeCl ₃	29
4.1.2 Menentukan konsentrasi larutan FeCl ₂	29
4.1.3 Reaksi netralisasi.....	29
4.2 Kemurnian nano-Fe ₃ O ₄ hasil sintesis.....	30
4.2.1 Hasil pengujian XRD	30
4.2.2 Hasil pengujian EDX	31
4.2.3 Hasil pengujian FTIR.....	34
4.3 Morfologi nano-Fe ₃ O ₄ hasil sintesis	35
4.3.1 Estimasi nilai <i>crystallite size (d)</i>	35
4.3.2 Hasil pengujian SEM	35
4.3.3 Hasil pengujian DLS	38
4.4 Hasil Pengujian BET.....	40
4.5 Hasil Pengujian VSM.....	41
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	45
5.1 Kesimpulan	45
5.2 Saran.....	45
DAFTAR PUSTAKA	47
LAMPIRAN.....	53
UCAPAN TERIMA KASIH	59
BIODATA PENULIS.....	61

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Klasifikasi nanopartikel berdasarkan bentuknya.....	3
Gambar 2.2	Hubungan ukuran partikel dengan gaya koersivitas.....	4
Gambar 2.3	Diameter kritis Ni, Co dan paduan Fe	4
Gambar 2.4	Material diamagnetik ditempatkan pada medan magnet non-uniform	6
Gambar 2.5	(a) <i>Magnetic domain</i> sebelum (b) dan sesudah diberi medan magnet eksternal.....	7
Gambar 2.6	Material paramagnetik ditempatkan pada medan magnet yang tidak seragam.....	7
Gambar 2.7	<i>Magnetic domain</i> feromagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal.....	8
Gambar 2.8	<i>Magnetic domain</i> antiferomagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal.....	9
Gambar 2.9	<i>Magnetic domain</i> ferrimagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal	9
Gambar 2.10	Kurva M vs H pada feromagnetik, <i>superparamagnetic</i> , paramagnetik dan diamagnetik	10
Gambar 2.11	Struktur kisi Fe ₃ O ₄ dan pengaturan elektron dalam orbitalnya.....	12
Gambar 2.12	Preparasi oksida besi dan kemungkinan reaksi oksidasinya	14
Gambar 2.13	Preparasi <i>monodisperse</i> SPIONs dengan penambahan alkohol, <i>oleic acid</i> dan <i>oleyamine</i> dengan sintesis solvotermal menggunakan Besi (III).....	15
Gambar 2.14	Nanopartikel berbentuk <i>hollow spherical</i> hasil sintesis <i>microemulsion</i>	16
Gambar 2.15	Hasil uji TEM dan SEM	18
Gambar 2.16	Hasil uji VSM dari sampel	18
Gambar 3.1	Diagram alir penelitian.	21
Gambar 3.2	Instrumen XRD <i>Malvern PANalytical Xpert Pro MPD</i>	24
Gambar 3.3	Instrumen SEM-EDX.	24
Gambar 3.4	<i>Malvern instrument zetasizer nano range</i>	25
Gambar 3.5	Instrumen BET <i>Quantachrome</i>	25
Gambar 3.6	Instrumen FTIR.	26
Gambar 3.7	Instrumen VSM.	27
Gambar 4.1	Skema DA pada proses netralisasi.....	30
Gambar 4.2	Hasil pengujian XRD.pada pasir dan sampel.	31
Gambar 4.3	Hasil pengujian EDX pasir.	32
Gambar 4.4	Hasil pengujian EDX pada sampel A.	32
Gambar 4.5	Hasil pengujian EDX pada sampel B.	33
Gambar 4.6	Grafik perbandingan % Fe ₃ O ₄ pada sampel.	34
Gambar 4.7	Hasil pengujian FTIR pada pasir dan sampel.....	34
Gambar 4.8	Pengujian SEM pada pasir dengan perbesaran 25,000 kali.....	36
Gambar 4.9	Pengujian SEM dengan perbesaran 20,000 kali pada sampel a) A1, b) A2, dan c) A3.	36
Gambar 4.10	Pengujian SEM dengan perbesaran 20,000 kali pada sampel a) B1, b) B2, dan c) B3.....	37
Gambar 4.11	Tren ukuran partikel rata-rata terhadap % DA dan temperatur.	38
Gambar 4.12	Distribusi ukuran partikel berdasarkan pengujian DLS.	39
Gambar 4.13	Grafik perbandingan nilai SSA pada sampel.....	41
Gambar 4.14	Hasil pengujian VSM.	42

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Besaran fundamental sifat magnetik material..	6
Tabel 2.2	Material diamagnetik	7
Tabel 2.3	Contoh material paramagnetik	8
Tabel 2.4	Sifat umum oksida besi	10
Tabel 2.5	Sifat termal oksida besi	11
Tabel 2.6	Sifat magnetik oksida besi	11
Tabel 2.7	Bahan yang digunakan untuk kapsulasi SPIONs	13
Tabel 2.8	Penelitian sebelumnya tentang sintesis Fe ₃ O ₄ menggunakan metode kopresipitasi	17
Tabel 2.9	Ukuran rata-rata sintesis Fe ₃ O ₄ tanpa dan menggunakan <i>surfactant</i>	18
Tabel 3.1	Kode sampel dan variasi perlakuan sampel	27
Tabel 4.1	Ukuran kristal pasir dan sampel	37
Tabel 4.2	Hasil pengujian DLS	40
Tabel 4.3	Nilai SSA dari pasir dan sampel	40
Tabel 4.4	Hasil pengujian VSM	42

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Nanopartikel magnetik telah menjadi fokus penelitian di beberapa dekade terakhir ini. Salah satu aplikasinya ialah pada dunia medis. Nanopartikel magnetik berguna untuk terapi, *imaging*, dan diagnosa kanker. Dalam skala nano, logam memiliki magnetisasi yang lebih besar dibandingkan dengan *bulk metal*. Namun dalam skala nanopartikel, logam tidak stabil di udara, dan mudah teroksidasi, sehingga kehilangan (penuh atau sebagian) magnetisasi-nya. Besi adalah logam feromagnetik dengan densitas momen magnetik yang tinggi (sekitar 220 emu/g). Nanopartikel (NP) oksida besi dalam kisaran ukuran dibawah 20 nm bersifat superparamagnetik (Schmid, 2004a). Terdapat beberapa tipe oksida besi seperti maghemite (γ -Fe₂O₃) dan hematit (α -Fe₂O₃) yang digunakan dalam banyak aplikasi teknologi. Bentuk lainnya ialah (ϵ -Fe₂O₃), (β -Fe₂O₃) dan magnetit (Fe₃O₄). Fase beta (β -Fe₂O₃) memiliki struktur *Face Centered Cubic* dan epsilon (ϵ -Fe₂O₃) memiliki struktur *orthorombic*, keduanya adalah fase transisi yang bersifat metastabil. Maghemite (γ -Fe₂O₃) memiliki struktur *cubic-spinel* yang stabil dibawah temperatur 300°C dan bertransformasi menjadi α -Fe₂O₃ (> 500°C) (Darezereshki et al., 2012).

Studi tentang nanopartikel magnetite (Fe₃O₄) mendapatkan perhatian yang lebih dibandingkan tipe oksida besi lainnya dikarenakan sifat magnetiknya yang lebih baik, biokompatibel, stabil, dan tidak beracun (Darezereshki et al., 2012; Jeon et al., 2006a; Nguyen et al., 2021). NP magnetite memiliki struktur *invers spinel cubic* yang memiliki sifat konduktifitas pada temperatur kamar dan sifat magnetik yang baik (Fang et al., 2012). Sifat superparamagnetik yang dihasilkan oleh NP Fe₃O₄ sangat berguna untuk aplikasi *biomedical sciences* (Gul et al., 2019). Telah banyak penelitian yang dilakukan mengenai aplikasi *superparamagnetic iron oxide nanoparticles* (SPIONs) untuk *analytical tools*, *biosensors*, *contrast agent*, *hyperthermia*, terapi fotoablasi, terapi fisik, pemisahan, *signal acquisition*, terapi bioanalisis, *drug delivery*, *bioimaging*, dan *lab-on-chip device* (Ganapathe et al., 2020; Wu et al., 2008).

Sintesis NP Fe₃O₄ dapat dilakukan menggunakan *precursor* FeCl₃ dan FeCl₂. Ukuran partikel antara 5 – 20 nm dengan magnetisasi sebesar 89.46 emu/g telah berhasil disintesis untuk aplikasi *procion dye removal* (Hariyani et al., 2013). Pengaruh penambahan *surfactant* terhadap morfologi bentuk partikel juga telah dipelajari seperti penambahan *polyethilen glycol* (PEG) dan *cetyl trimethyl ammonium bromide* (CTAB) yang menunjukkan PEG cenderung mengubah *spherical-shape particle* menjadi *rod-shape particle* sedangkan CTAB tidak memiliki pengaruh terhadap bentuk partikel (Shokuhfar et al., 2008). Ukuran partikel rata-rata 25 nm dengan *saturation magnetization* 35.6 emu/g telah dilaporkan dengan penambahan *diethylamine* (DA) sebagai *soft template* (Ahmad et al., 2009).

Selain itu pasir besi merupakan salah satu mineral alam yang dapat dijadikan sebagai sumber besi (Asri & Didik, 2021). Berdasarkan data dari Pusat Sumber Daya Geologi (2016), pada tahun 2015 jumlah sumber daya pasir besi jumlahnya lebih besar dibanding besi laterit dengan jumlah sebesar 4.45 miliar ton bijih dan 1.68 miliar ton logam, sedangkan cadangannya berjumlah sebesar 808.93 juta ton dan 397.33 juta ton (Haryadi, 2017). Oksida besi yang terdapat pada pasir ialah tipe magnetit dan maghemit yang keduanya memiliki sifat magnetik yang baik (Fahmiati et al., 2017). Oleh karena itu pasir besi dapat menjadi sumber daya alam yang potential untuk sintesis nanopartikel magnetik seperti NP Fe₃O₄.

Telah dilaporkan bahwa sintesis NP Fe₃O₄ dari pasir besi berhasil dilakukan. Partikel dengan ukuran diameter 193.8 dan nilai magnetisasi sebesar 31 emu/g berhasil disintesis menggunakan metode kopresipitasi (Gunanto et al., 2018). Penambahan PEG meningkatkan magnetisasi menjadi 51 emu/g (Bukit et al., 2015). Perbandingan antara ada dan tidaknya PEG

pada ukuran partikel, saturasi magnetik, dan luas permukaan telah dilaporkan di mana ukuran partikel dan saturasi magnetik lebih kecil dengan adanya PEG tetapi memiliki luas permukaan yang lebih besar. Penggunaan DA sebagai *soft-template* menghasilkan ukuran partikel yang mampu mencapai 7,31 nm dan luas permukaan 616.8 m²/g namun dengan nilai magnetisasi yang sangat kecil yaitu 1.2 emu/g (Taufiq et al., 2018).

Pada penelitian ini difokuskan pada sintesis Fe₃O₄ dengan metode kopresipitasi dari pasir besi alam yang didapat dari pesisir pantai selatan Jawa sebagai sumber Fe (III) dan *steelwool* sebagai sumber Fe (II) dengan penambahan DA. Perhatian diberikan untuk mempelajari pengaruh variasi persentase DA dan temperatur *annealing* atau pemanasan terhadap morfologi ukuran dan bentuk partikel, luas permukaan, dan sifat magnetik dari partikel Fe₃O₄ hasil sintesis nanti.

1.2 Perumusan Masalah

Penelitian ini memiliki rumusan masalah sebagai berikut:

1. Bagaimana pengaruh DA terhadap ukuran partikel, luas permukaan, dan sifat magnetik Fe₃O₄ yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi?
2. Bagaimana pengaruh temperatur annealing terhadap ukuran partikel, luas permukaan dan sifat magnetik Fe₃O₄ yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi?

1.3 Batasan Masalah

Batasan masalah yang digunakan yaitu reaksi-reaksi kimia yang terjadi dianggap sempurna secara stoikiometri.

1.4 Tujuan Penelitian

Penelitian ini memiliki tujuan sebagai berikut:

1. Mengetahui pengaruh DA terhadap ukuran partikel, luas permukaan, dan sifat magnetik Fe₃O₄ yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi.
2. Mengetahui pengaruh temperatur annealing terhadap ukuran partikel, luas permukaan dan sifat magnetik Fe₃O₄ yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi.

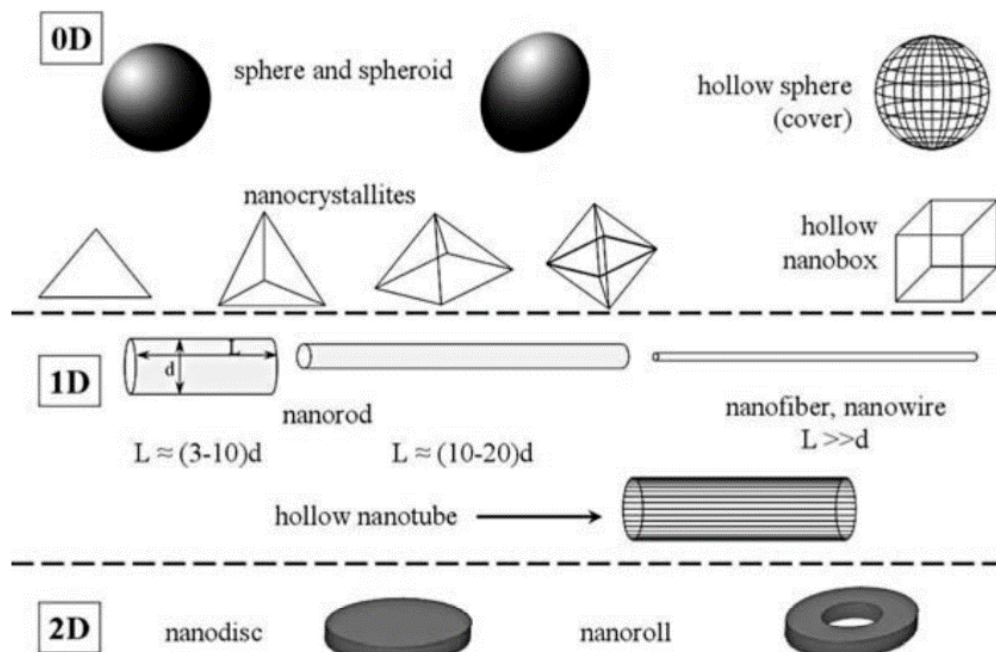
1.5 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan memiliki manfaat untuk memberikan informasi empiris mengenai pengaruh dietilamin untuk modifikasi ukuran Fe₃O₄ serta temperatur annealing optimal untuk memperoleh Fe₃O₄ dengan skala nano, homogenitas tinggi, luas area yang tinggi dan bersifat superparamagnetik.

BAB II TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Nanopartikel Magnetik

Nanopartikel adalah partikel fisik yang memiliki perbedaan secara signifikan dibanding properti dari *bulk material*-nya dan memiliki setidaknya dimensi 1 nm dan tidak lebih dari 100 nm. Sifat magnetik (dan sifat fisik lainnya) dari nanopartikel bergantung pada ukuran partikel. Oleh karena itu, partikel yang ukurannya sebanding dengan (atau lebih rendah dari) ukuran domain magnetiknya secara *bulk material* banyak dikembangkan oleh peneliti. Nanomaterial diklasifikasikan ke dalam *compact materials* dan *nanodispersions*. Tipe pertama disebut bahan berstruktur nano, yaitu, bahan isotropik dalam komposisi makroskopik yang menyusun satu struktur tertentu. Tidak seperti bahan berstruktur nano, *nanodispersions* termasuk media dispersi homogen (vakum, gas, cairan, atau padat) dan inklusi nanopartikel tersebar dalam media ini dan terisolasi satu sama lain. Pada penelitian terkini peneliti seringkali berurusan dengan *nanopowders* yang butir-butirnya dipisahkan oleh lapisan tipis (seringkali monoatomik) atom cahaya, yang mencegah terjadinya aglomerasi. Terdapat nanopartikel *quasi-zero-dimensional* (0D), nanopartikel *quasi-one-dimensional* (1D), nanopartikel *quasi-two-dimensional* (2D) seperti pada **Gambar 2.1** (Schmid, 2004).



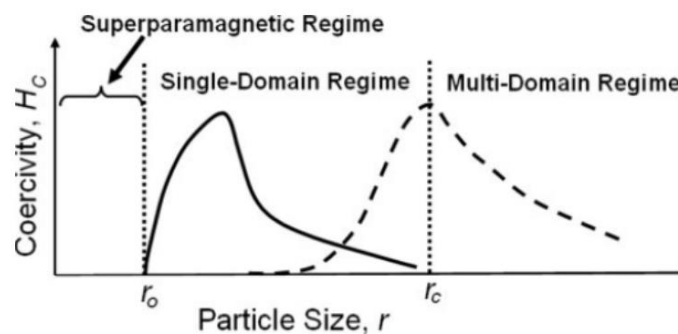
Gambar 2.1 Klasifikasi nanopartikel berdasarkan bentuknya (Schmid, 2004).

Nanopartikel magnetik adalah jenis nanopartikel yang memberikan respon terhadap medan magnet. Partikel-partikel tersebut umumnya terdiri dari unsur-unsur magnetik seperti besi, nikel, kobalt dan senyawa kimianya. Dalam kebanyakan kasus, ukuran partikel yang berkisar dari 1 hingga 100 nm memiliki sifat superparamagnetisme. Superparamagnetisme adalah bentuk magnetisasi ferromagnetik dan ferrimagnetik yang kecil pada nanopartikel, yang menunjukkan perilaku paramagnetik di bawah Temperatur *Curie*. Dengan tidak adanya medan magnet eksternal, magnetisasi nanopartikel bernilai nol. Setelah diberikan medan magnet eksternal, nanopartikel ter-magnetisasi mirip dengan paramagnetik, namun nilai *magnetic susceptibility*-nya jauh lebih besar daripada paramagnetik. Nanopartikel memiliki kemampuan yang baik sebagai katalis, *biomedicine*, *magnetic resonance imaging*, penyimpanan data dan *environmental water treatment remediation* (X.-M. Li et al., 2011).

Nanopartikel dari beberapa bahan feromagnetik dan ferimagnetik digunakan dalam teknologi modern. Nanopartikel maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$) telah banyak digunakan untuk *magnetic data storage* pada pita magnetik (tapes) dan media lainnya. Nanopartikel maghemit dan magnetit (Fe_3O_4) umumnya digunakan dalam *ferrofluids* seperti didalam pengeras suara. Selain itu, partikel tersebut memiliki banyak aplikasi dalam bioteknologi dan kedokteran. Baru-baru ini, ada banyak fokus penelitian pada partikel paduan FePt sebagai bahan baru untuk *magnetic data storage* (Jeon et al., 2006).

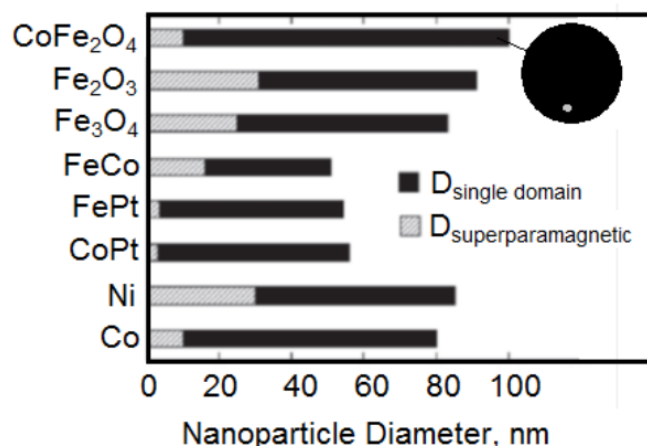
Partikel magnetik umumnya ditemukan di batuan dan sedimen. Partikel hematit antiferomagnetik ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) memberikan warna kemerahan pada tanah tropis. Maghemit feromagnetik ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$), yang berwarna coklat kemerahan. Magnetit (Fe_3O_4) memiliki magnetisasi tertinggi diantara oksida besi lainnya yaitu mineral berwarna hitam. Goethit ($\alpha\text{-FeOOH}$), nanopartikel bersifat antiferomagnetik dan dapat ditemukan terutama di tanah di zona beriklim sedang yang dapat menimbulkan warna kekuningan (Mørup Steen and Frandsen, 2003).

Umumnya nanopartikel magnetik memiliki sifat superparamagnetik dikarenakan ukurannya yang sangat kecil. Pada nanopartikel magnetik jika diameter partikel saat sintesis dibawah *critical diameter* maka akan terbentuk *single domain* pada ukuran yang kecil yang memberikan sifat superparamagnetik. **Gambar 2.2** menunjukkan pengaruh ukuran terhadap sifat magnetik.



Gambar 2.2 Hubungan ukuran partikel dengan gaya koersivitas (Kolhatkar et al., 2013).

Berbagai *critical diameter* pada beberapa material dapat dilihat pada gambar dibawah ini.



Gambar 2.3 Diameter kritis Ni, Co dan paduan Fe (Kolhatkar et al., 2013).

2.2 Sifat Magnetik

Besaran dasar yang memberikan sifat magnetisme pada material adalah momen magnetik elektron yang berada di kulit terluar atom atau pada susunan kristal. Jika elektron pada kulit terluar atom tidak mengisi penuh orbital, maka atom tersebut memiliki *non-zero magnetic moment* (Schmid, 2004). Hubungan antara struktur nanopartikel dan sifat magnetik memberikan klasifikasi morfologi nanopartikel. Pada skala nanopartikel sifat magnetik benar-benar tidak dipengaruhi oleh interaksi antar partikelnya namun dikarenakan ukuran partikelnya. Sedangkan pada *bulk material* sifat magnetik benar-benar dipengaruhi oleh interaksi antar atomnya seperti struktur kristal, grain boundaries dan sebagainya. Pada nanopartikel magnetik, sifat magnetik berubah saat ukuran partikel nano dibawah dari critical length-nya. Sebab pada ukuran nano, luas permukaan partikel jauh lebih besar (Kolhatkar et al., 2013).

2.2.1 Magnetic moment (μ_m)

Sifat magnetik secara makroskopik dihasilkan oleh *magnetic moment* pada setiap elektronnya. Alasan dasar mengapa material memberikan respon terhadap suatu medan magnet eksternal ialah dikarenakan atom-atomnya memiliki *magnetic moment*. Atom-atom dapat dianggap sebagai magnet yang sangat kecil. Sifat magnetik pada solid material dikarenakan perpindahan dari elektronnya. Terdapat 3 penyebab utama yang memberikan nilai *magnetic moment* pada suatu atom (Kasap, 2018):

1. *Orbital magnetic moment* (μ_{orb}): *magnetic moment* yang dihasilkan akibat perpindahan elektron mengelilingi orbitnya sendiri.

$$\mu_{orb} = m_l \beta$$

m_l = bilangan kuantum magnetic

$\beta = 9.27 \times 10^{-24} \text{ Am}^2$ (Bohr magneton)

2. *Spin magnetic moment* terhadap elektron (μ_{spin}): *magnetic moment* yang dihasilkan karena perputaran dari elektron itu sendiri.

$$\mu_{spin} = \pm \beta$$

Nilai positif atau negatifnya bergantung pada arah spinnya.

3. *Spin magnetic moment* terhadap inti atom: *magnetic moment* yang dihasilkan akibat elektron mengelilingi inti atom.

Namun, *spin magnetic moment* nilainya sering diabaikan karena perputaran elektron terhadap inti atom nilainya sangat kecil. Sehingga nilai *magnetic moment* untuk satu atom ialah

$$\mu_m = \mu_{orb} + \mu_{spin}$$

2.2.2 Magnetization (M)

Magnetization ialah sifat material yang bergantung pada magnetic moment atom-atomnya. Mengingat jumlahan vektor setiap *magnetic moment*, *magnetization* mencerminkan interaksi magnetik pada tingkat molekuler mikroskopik, menghasilkan perilaku eksperimental yang luar biasa sehubungan dengan parameter eksternal seperti temperatur dan medan magnet (H). Secara matematis *magnetization* ialah jumlahan *magnetic moment* per unit volume (Kasap, 2018):

$$M = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^n \mu_m = \frac{N \mu_{atom}}{V} = n_{atom} \mu_{atom}$$

2.2.3 Magnetic Susceptibility (χ)

Magnetic Susceptibility secara matematis didefinisikan sebagai rasio antara *magnetization* M dengan medan magnet eksternal H.

$$\chi = \frac{M}{H}$$

Semakin besar dan positif nilai χ dari suatu material, maka sifat kemagnetannya semakin kuat (P. George. Wang et al., 2005).

Tabel 2.1 Besaran fundamental sifat magnetik material (P. George. Wang et al., 2005).

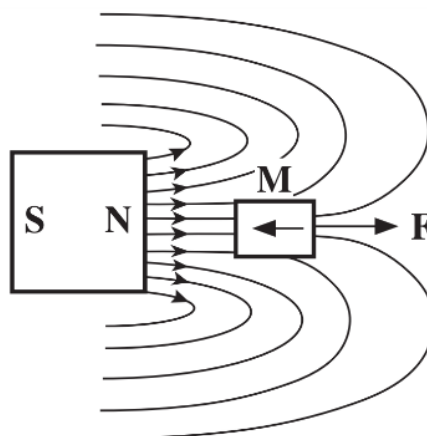
Besaran	Simbol	cgs	SI	Conversion
Energi	E	erg	J (joule)	1 erg = 10^{-7} J
Medan magnet	H	Oe (oersted)	A/m	1 Oe = 79,58 A/m
Induksi magnet	B	G (gauss)	T (tesla)	1 G = 10^{-4} T
Fulks magnet	Φ	Mx (maxwell)	Wb (weber)	1 Mx = 10^{-8} Wb
Magnetization	M	Emu/cm ³	Wb/m ²	1 emu/cm ³ = 12,57 Wb/m ²

2.2. 4 Klasifikasi Sifat Magnet

Secara umum, material magnetik diklasifikasikan menjadi 5 kelompok yaitu diamagnetik, paramagnetik, ferromagnetik, antiferromagnetik dan ferrimagnetik (Kasap, 2018).

1. Diamagnetik

Material diamagnetik memiliki *magnetic susceptibility* yang kecil dan negatif. Sebagai contoh silikon dengan $\chi = -5.2 \times 10^{-6}$. Permeabilitas relative dari material diamagnetik sedikit kurang dari satu serta *magnetic susceptibility*-nya tidak terpengaruh oleh temperatur. Ketika ditempatkan pada medan magnet, vektor *magnetization* M didalam material berlawanan dengan arah medan magnet yang diberikan. Nilai *magnetic susceptibility* yang negatif dapat diinterpretasikan bahwa material diamagnetik mencoba meniadakan efek medan magnet dari luar. Ketika material diamagnetik ditempatkan didalam medan magnet yang tidak seragam, *magnetization* M dari material berlawanan dan total gaya yang dialami spesimen sangat kecil seperti pada **Gambar 2.4**.



Gambar 2.4 Material diamagnetic ditempatkan pada medan magnet non-uniform (Kasap, 2018).

Suatu material akan bersifat diamagnetik saat *magnetic moment* dari total atom-atomnya bernilai nol. Hal ini ditandai saat seluruh elektronnya berpasangan. Fenomena ini membuat atom-atom tidak memiliki sifat magnet yang permanen ketika tidak

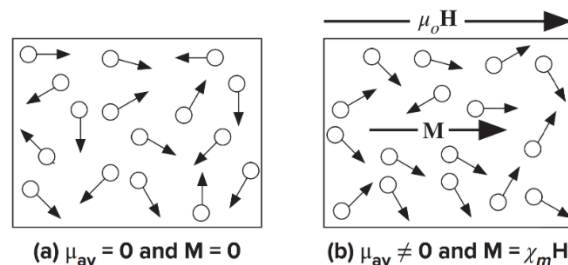
diterapkan medan magnet. Kristal kovalen dan banyak kristal ionik memiliki sifat diamagnetik karena semua atom-atomnya tidak memiliki elektron yang tidak berpasangan. Superkonduktor ialah material diamagnetik yang sempurna dengan nilai $\chi = -1$, dan menolak medan magnet jika diaplikasikan medan magnet eksternal (Kasap, 2018).

Tabel 2.2 Material diamagnetik (Elena Gavrila, 2014).

Material	Magnetic susceptibility (χ)
Si	$-1,2 \times 10^{-6}$
Cu	$-1,08 \times 10^{-6}$
Zn	$-1,9 \times 10^{-6}$
Ge	$-1,5 \times 10^{-6}$
Se	$-4,0 \times 10^{-6}$
Ag	$-2,4 \times 10^{-6}$
Pb	$-1,4 \times 10^{-6}$
Al ₂ O ₃	$-3,5 \times 10^{-6}$

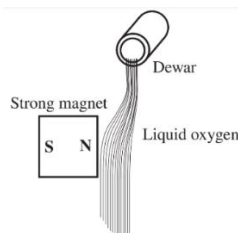
2. Paramagnetik

Material paramagnetik mempunyai nilai *magnetic susceptibility* yang kecil mirip dengan diamagnetik namun nilainya positif. Sebagai contoh, oksigen memiliki nilai $\chi = 2.1 \times 10^{-6}$ pada tekanan atmosfer dan temperatur kamar. Masing-masing atom oksigen memiliki *magnetic moment* tidak nol. Saat tidak ada medan magnet eksternal, domain magnetiknya memiliki arah yang acak seperti pada **Gambar 2.5** (a) serta nilai magnetisasi M juga bernilai nol.



Gambar 2.5 (a) *Magnetic domain* sebelum (b) dan sesudah diberi medan magnet eksternal (Kasap, 2018).

Namun saat diberi medan magnet eksternal H *magnetic moment*-nya sedikit lebih terarah mengikuti arah H seperti pada gambar **Gambar 2.5** (b). Semakin tinggi medan magnet eksternal yang diterapkan maka semakin tinggi *magnetization* yang terjadi. Pada material paramagnetik magnetisasi akan menurun jika temperatur dinaikkan.



Gambar 2.6 Material paramagnetik ditempatkan pada medan magnet yang tidak seragam (Kasap, 2018).

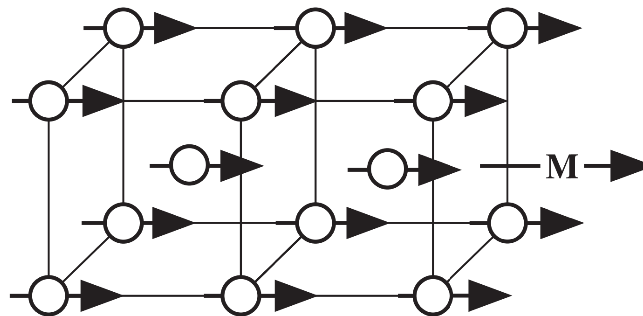
Ketika material paramagnetik ditempatkan pada medan magnet yang tidak seragam, *magnetization* M akan menguat dan mengarah searah dengan H . Contohnya seperti oksigen cair seperti **Gambar 2.6**.

Tabel 2.3 Contoh material paramagnetik (Elena Gavril, 2014).

Material	<i>Magnetic susceptibility</i> (χ)
Na	$8,6 \times 10^{-6}$
Al	$7,7 \times 10^{-6}$
Mn	$1,2 \times 10^{-6}$
Ta	$1,1 \times 10^{-6}$
W	$3,5 \times 10^{-6}$
Pt	$1,2 \times 10^{-6}$
U	$3,3 \times 10^{-6}$
CoO	$0,75 \times 10^{-6}$
Fe ₃ C	$3,7 \times 10^{-6}$
Fe	$2,5 \times 10^{-6}$

3. Feromagnetik

Material feromagnetik seperti besi bisa menghasilkan *magnetization* M yang besar bahkan jika tidak ada medan eksternal. *Magnetic susceptibility*-nya ialah positif dan sangat besar (bahkan tak berhingga) dan tentunya bergantung dengan intensitas medan magnet yang diterapkan. Hubungan antara *magnetization* M dan medan magnet eksternal H tidak linier pada sifat ini. Pada medan yang cukup tinggi, *magnetization* M dapat mencapai angka yang maksimal. Asal mula sifat feromagnetik sendiri ialah pada *quantum mechanical exchange interaction* antar atom yang menghasilkan *magnetization* yang tinggi. **Gambar 2.7** menunjukkan *magnetization* dari besi ketika tidak ada medan magnet eksternal. Bahkan saat medan eksternal tidak diterapkan, *magnetic moment*-nya memiliki arah yang sama. Namun sifat feromagnetik hanya berlaku dibawah temperatur *Curie*, ketika diatas temperatur *Curie* sifat feromagnetik akan hilang menjadi sifat paramagnetik.

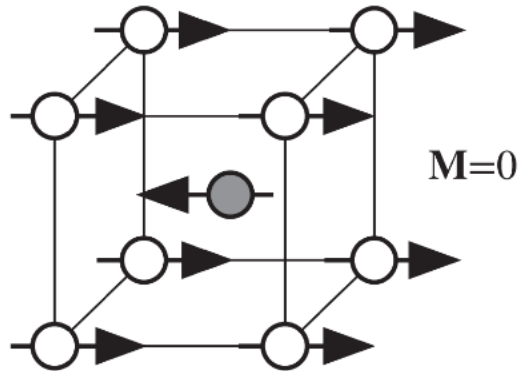


Gambar 2.7 *Magnetic domain* pada feromagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal (Kasap, 2018).

4. Antiferomagnetik

Material antiferomagnetik seperti kromium mempunyai *magnetic susceptibility* yang kecil dan positif. Sifat ini mirip dengan sifat paramagnetik, tidak bisa menghasilkan *magnetization* saat tidak diterapkan medan magnet eksternal. Perbedaannya pada sifat ini ini, *magnetic moment*-nya tertata dengan teratur namun saling berlawanan sehingga

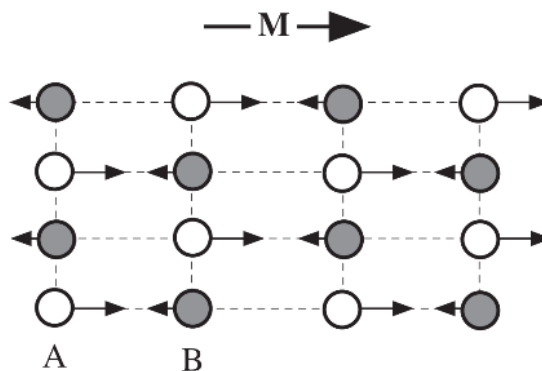
saling meniadakan seperti pada gambar **Gambar 2.8**. *Magnetic moment* yang saling berlawanan menghasilkan *zero magnetization*. Sifat ini terjadi dibawah temperature *Neel*, diatas temperature *Neel* sifat ini berubah menjadi sifat paramagnetik.



Gambar 2.8 *Magnetic domain* antiferromagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal (Kasap, 2018).

5. Ferimagnetik

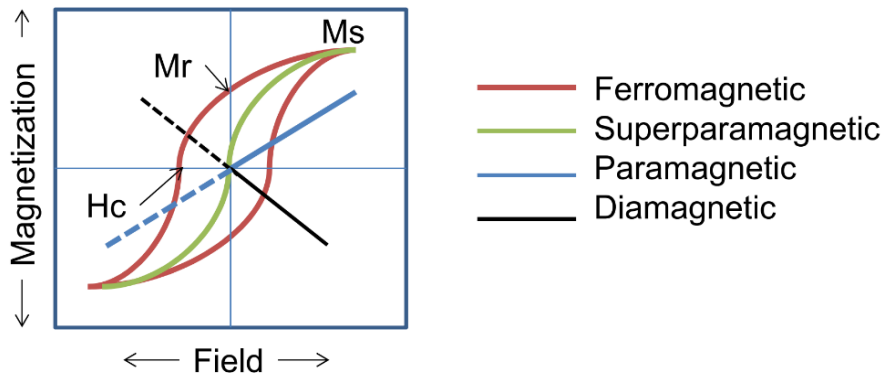
Material ferimagnetik seperti Fe_3O_4 memiliki sifat magnetik yang hampir sama dengan feromagnetik dibawah temperature *Curie*. Diatas temperature *Curie* akan berubah menjadi paramagnetik. Sifat ini disebabkan oleh susunan *magnetic moment* yang tersusun seperti pada **Gambar 2.9**. Susunan *magnetic moment*-nya tersusun dalam 2 arah yang berlawanan mirip dengan antiferromagnetik namun *magnetic moment* oleh atom A lebih besar dari B sehingga *net magnetic moment*-nya tidak nol. Maka terdapat *magnetization* M pada material ini walaupun ketika medan eksternal H tidak diterapkan. Ferimagnetik umumnya non-konduktor sehingga seringkali digunakan pada aplikasi *high-frequency electronics*. Hampir semua material magnetik yang digunakan dalam aplikasi elektronika ialah material yang bersifat feromagnetik dan ferimagnetik.



Gambar 2.9 *Magnetic domain* ferrimagnetik tanpa diberi medan magnet eksternal (Kasap, 2018).

Perbandingan kurva M vs H dari sifat-sifat diatas terlihat pada Gambar 2.8. Dari kurva tersebut terlihat dengan jelas bahwa sifat diamagnetik memiliki gradien yang negatif karena *magnetic susceptibility*-nya negatif. Dan sifat paramagnetik memiliki gradien yang positif. Keduanya menunjukkan nilai *magnetization* M bernilai 0 saat nilai H bernilai 0. Berbeda dengan sifat feromagnetik yang masih memiliki nilai *magnetization* M bahkan saat nilai H = 0.

Nilai ini dinamakan *Remanance Magnetization* (M_r) dan terdapat pula nilai H yang menyebabkan nilai M kembali menjadi 0. Nilai H ini dinamakan gaya koersifitas. Disisi lain terdapat kurva *superparamagnetic* yang sebenarnya bagian dari sifat paramagnetik namun nilai *magnetization*-nya mampu mencapai *magnetization* seperti pada feromagnetik. Hal ini bisa terjadi jika material memiliki *single domain* (skala nano) (Schmid, 2004a).



Gambar 2.10 Kurva M vs H pada feromagnetik, *superparamagnetic*, paramagnetik dan diamagnetik (Kasap, 2018).

2.3 Sifat Magnetik Oksida Besi

Terdapat 6 jenis senyawa besi dalam keadaan oksida diantaranya: hematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), magnetit (Fe_3O_4), maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$), Wustit (FeO), ($\beta\text{-Fe}_2\text{O}_3$) dan ($\varepsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$). Oksida besi jenis $\beta\text{-Fe}_2\text{O}_3$ dan $\varepsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ialah fasa peralihan yang merupakan senyawa jarang dan hanya disintesis di dalam laboratorium. Sintesisnya berasal dari $\beta\text{-FeOOH}$ dibawah tekanan 0 atm pada temperatur 170 °C. Strukturnya merupakan peralihan antara hematit dan maghemit. Fasa stabil yang berada di alam umumnya hanya besi alfa atau hematit, besi gamma atau maghemit, magnetit dan wustit. Sifat umum dari oksida besi dapat dilihat dalam tabel berikut (Cornell & Schwertmann, 2003):

Tabel 2.4 Sifat umum oksida besi (Cornell & Schwertmann, 2003).

Nama oksida	Hematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)	Magnetit (Fe_3O_4)	Maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$)	Wustit (FeO)
Kisi kristal	<i>Rhombohedral</i> <i>hexagonal</i>	<i>Cubic</i>	<i>Cubic</i> atau <i>tetragonal</i>	<i>Cubic</i>
Cell dimension	$a = 0,50356; c = 1,37489$	$a = 0,8396$	$a = 0,8374$	$a = 0,4302 - 0,4275$
Formula units/unit cell (Z)	6	8	8	4
Densitas	5,26	5,18	4,87	5,9 – 5,99
Warna	Merah	Hitam	Merah kecoklatan	Hitam
Kekerasan	6,5	5,5	5	5
Sifat magnetik	antiferomagnetik	ferimagnetik	ferimagnetik	ferimagnetik
Temperatur Neel / Curie (K)	956	850	820-986	203-211

Hematit, $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ialah mineral oksida besi yang telah lama ditemukan batuan dan tanah. Warna fisiknya merah seperti darah jika halus, dan hitam atau abu-abu jika dalam bentuk kristalin kasar. Hematit memiliki struktur *corundum* ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) yaitu *hcp anion packing*. Senyawanya sangat stabil dan seringkali menjadi senyawa akhir dari transformasi oksida lainnya. Hematit ialah pigmen penting dan mineral berharga. Magnetit Fe_3O_4 berwarna hitam, mineral ferimagnetik mengandung dua jenis kation besi (II) dan besi (III). Mempunyai struktur *invers spinel*. Magnetit ialah mineral penting. Bersama dengan *titanomagnetite* memberikan sifat magnetik pada batuan. Maghemit $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ berwarna merah kecoklatan, mineral ferimagnetik memiliki struktur yang sama dengan magnetit namun tanpa kation Fe^{2+} . Proses pembentukannya terjadi pada tanah yaitu transformasi dari Fe_3O_4 . Maghemit juga merupakan material magnetik yang penting. Wustit, FeO ialah oksida besi yang hanya mengandung besi (II). Biasanya *non-stoichiometric* (kekurangan O). Strukturnya mirip dengan NaCl dan *ccp anion packing*. Wustit berwarna hitam (Cornell & Schwertmann, 2003).

Tabel 2.5 Sifat termal oksida besi (Cornell & Schwertmann, 2003).

Oksida	Titik leleh ($^{\circ}\text{C}$)	Titik didih ($^{\circ}\text{C}$)	Heat of fusion	Heat of decomposition (kJ/mol)	Heat of vaporization
Hematit	1350	–	–	461,4	–
Magnetit	1583 – 1597	2623	138,16	605,0	298 di 2623°C
Maghemit	–	–	–	456,7	–
Wustit	1377	2512	31,4	529,6	230,3 di 2517°C

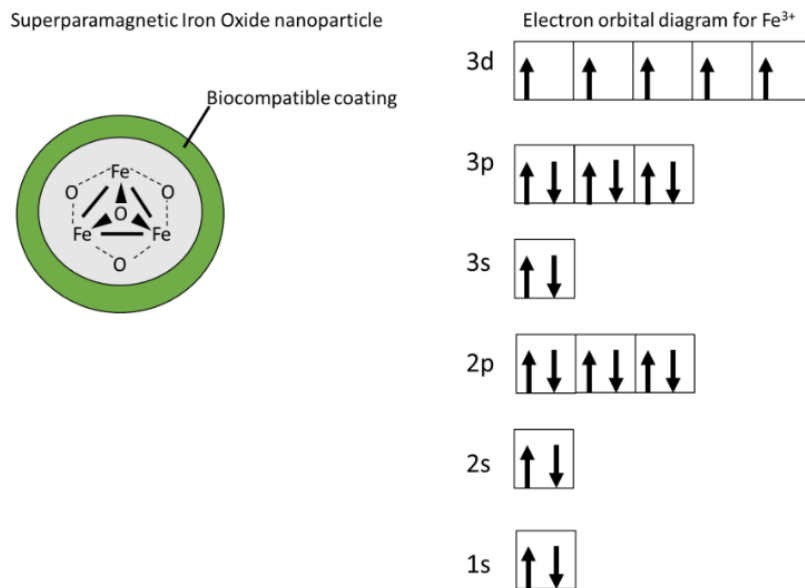
Hampir semua oksida besi memiliki setidaknya sifat paramagnetik. Besi alfa, besi gamma dan magnetit merupakan oksida yang memiliki *magnetization saturation*. Besi gamma dan magnetit bersifat ferimagnetik, merupakan fasa dengan sifat magnetik yang kuat.

Tabel 2.6 Sifat magnetik oksida besi (Cornell & Schwertmann, 2003).

Oksida	Temperatur Curie atau Neels (K)	Sifat magnetik	Saturation Magnetization pada 300 K (Am^2/kg)
Hematit	956	antiferomagnetik	0,3
Magnetit	850	ferimagnetik	92 – 100
Maghemit	820 – 986	ferimagnetik	60 – 80
Wustit	203 - 211	antiferomagnetik	-

2.4 Superparamagnetic Iron Oxide Nanoparticles (SPIONs)

Magnetit (Fe_3O_4), maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$), dan hematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) merupakan tiga oksida besi utama yang termasuk dalam kategori SPIONs. *Ferrite* yaitu oksida besi yang dicampur dengan logam transisi lainnya (misalnya Cu, Co, Mn, dan Ni), juga telah dilaporkan memberikan sifat superparamagnetik. SPIONs terdiri dari inti yang terbuat dari oksida besi yang dapat ditargetkan ke daerah yang diperlukan melalui magnet eksternal. SPIONs memiliki sifat-sifat menarik seperti *superparamagnetic*, *high field irreversibility*, dan *high saturation field*. Karena bersifat paramagnetik maka nanopartikel tidak menunjukkan interaksi magnetik saat medan magnet eksternal dihapus (nilai *remanence magnetization*-nya nol). SPIONs biasanya memiliki dua konfigurasi struktural: (i) inti partikel magnetik (biasanya magnetit Fe_3O_4 , atau maghemite, $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ dilapisi dengan polimer biokompatibel atau (ii) polimer biokompatibel berpori di mana SPIONs diendapkan di dalam pori-pori (Mahmoudi et al., 2011).



Gambar 2.11 Struktur kisi Fe₃O₄ dan pengaturan elektron dalam orbitalnya (Nelson et al., 2020).

Biocompatible coating bertindak untuk melindungi partikel magnetik dari lingkungan sekitarnya.

2.4.1. Stabilitas koloid SPIONs

Stabilitas SPIONs pada suspensi terkontrol disebabkan oleh 3 jenis gaya yaitu: (a) *hydrophobic-hydrophilic*, (b) *magnetic*, dan (c) *van der Waals*. SPIONs cenderung membentuk agregat dalam ukuran mikron pada suspensi karena interaksi hidrofobik antara partikel yang berukuran nano (rasio luas permukaan besar terhadap volume). Partikel yang berukuran mikron membentuk agregat karena interaksi *magnetic dipoles* dan termagnetisasi akibat partikel disekitarnya. Dengan adanya medan magnet eksternal, magnetisasi lebih lanjut dari kelompok-kelompok ini dapat terjadi dan meningkatkan agregasi. Secara umum, partikel agregat berukuran nanometer dalam suspensi dikarenakan gaya van der Waals untuk meminimalkan luas permukaan total atau energi interfacial. Akibatnya, agregasi tersebut dapat menghambat kemanjuran SPIONs dalam *drug delivery* karena luas permukaannya yang rendah dan ukuran yang lebih besar. Oleh karena itu, stabilitas SPIONs dalam suspensi dengan memodifikasi permukaannya ialah hal yang penting supaya partikel tetap berukuran nanometer (Mahmoudi et al., 2011).

Modifikasi permukaan SPIONs dapat dilakukan baik selama sintesis atau dalam proses pasca-sintesis. **Tabel 2.7** menyajikan daftar bahan yang telah digunakan sebagai agen stabilisasi selama sintesis SPIONs. Zat ideal yang digunakan untuk stabilisasi SPIONs harus *biocompatibel* dan *biodegradable*. Namun, molekul yang paling umum digunakan adalah surfaktan seperti asam oleat, asam laurat, asam sulfonat alkana, dan asam fosfonat alkana. Molekul surfaktan bersifat *amphiphilic* dan berperan dalam interaksi antara permukaan SPIONs dan pelarut. Sebagian besar sintesis yang dimediasi surfaktan dilaporkan dalam pelarut organik, seperti heksadecane, toluena, n-heksana dll. Gugus ekor hidrofobik (rantai hidrokarbon) dari molekul surfaktan mengikat permukaan SPIONs. Modifikasi SPIONs pasca-sintesis, yang dikenal sebagai *core-shell* NPs, juga telah dipelajari secara luas. Bahan yang digunakan untuk *core-shell* SPIONs sebagian besar polimer, silika, logam (misalnya emas dan kadmium

/selenium) dan molekul pewarna organik. Bahan pelapis melindungi inti terhadap oksidasi dan, karenanya, mempertahankan sifat magnetik dari SPIONs (Mahmoudi et al., 2011).

Tabel 2.7 Bahan yang digunakan untuk kapsulasi SPIONs (Mahmoudi et al., 2011).

Zat yang digunakan	Ukuran dan distribusinya	Zat yang digunakan	Ukuran dan distribusinya
<i>Amorphous silica</i>	20 – 200 nm, luas	PMMA	10 – 50 nm, sempit
<i>Mesoporous silica</i>	10 – 300 nm, luas	<i>Polydipyrrole</i>	20 – 100 nm, luas
PEG	10 – 50 nm, sempit	<i>Ethyl cellulose</i>	20 – 50 nm, luas
PVA	10 – 50 mm, sempit	<i>Chitosan</i>	20 – 100 nm, luas
PVP	10 – 20 nm, sempit	<i>Dextran</i>	10 – 200 nm, sempit
<i>Polyacrylic acid</i>	~250 nm, sempit	<i>Starch</i>	10 – 20 nm, sempit
<i>Polystyrene</i>	10 – 20 nm, sempit	<i>Liposome</i>	50 – 200 nm, luas
Albumin	100 – 200 nm, luas	<i>Erythrocytes</i>	10 – 100 nm, luas

2.4.2. Bentuk, ukuran dan distribusi ukuran

Ukuran dan distribusi ukuran dari SPIONs ialah parameter penting. Ukuran SPIONs dan zat pelapisnya sangat penting dalam menentukan kemampuan superparamagnetik partikel. Idealnya, SPIONs harus memiliki distribusi ukuran yang sempit untuk memperoleh sifat fisik dan kimia yang seragam. Misalnya jika zat pelapisnya PEG, ukuran diameternya berada pada rentang 40 – 50 nm dan menghasilkan saturation magnetization antara 45 hingga 50 emu/g. Namun untuk partikel yang tidak terlapis memiliki *saturation magnetization* 67.8 emu/g. Untuk SPIONs antara 10 dan 15 nm, terdapat sekitar 62.896 atom pada masing-masing SPIONs (Nelson et al., 2020). *Saturation magnetization* dari SPIONs dan ukuran partikel memiliki hubungan yang linier dengan luas permukaan partikel. Keuntungan utama lain jika ukuran partikel lebih kecil dari 100 nm adalah luas permukaan efektif yang lebih tinggi sehingga *surfactant* lebih mudah menempel (Mahmoudi et al., 2011).

2.5 Metode Sintesis SPIONs

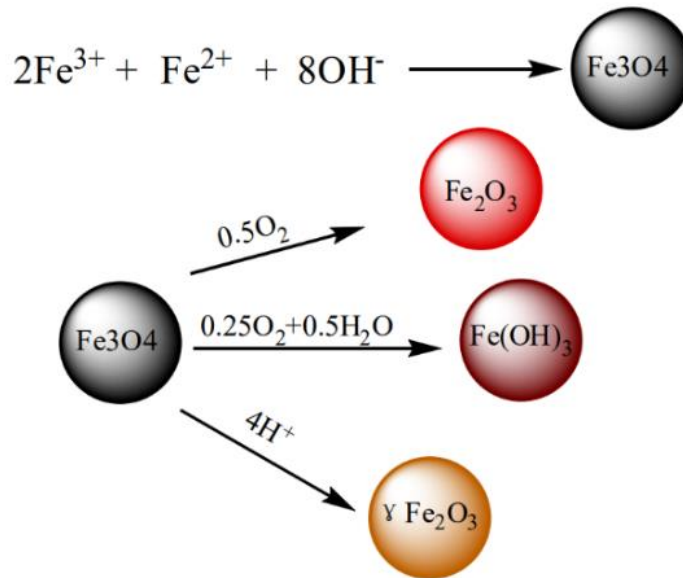
Metode preparasi sangat penting dalam menentukan ukuran partikel SPIONs, distribusi ukuran, morfologi, sifat magnetik, dan luas permukaan. Banyak metode yang telah dikembangkan seperti metode kopresipitasi, *solvothermal*, sintesis hidrotermal, mikroemulsi, dan sintesis *sonochemical* (X.-M. Li et al., 2011).

2.5.1. Metode kopresipitasi

Metode kopresipitasi ialah metode yang paling sederhana untuk sintesis SPIONs. Pada metode ini perhitungan stoikiometri untuk pencampuran ion *ferrous* (Fe^{3+}) dan *ferric* (Fe^{2+}) dalam media air digunakan sebagai sumber besi, yang dalam kondisi alkali menghasilkan nanopartikel superparamagnetik. Dalam pendekatan metode *Massart*, sebuah larutan alkalin, misalnya, amonia, dititrasi ke dalam larutan yang mengandung besi Fe^{2+} dan Fe^{3+} . Sedangkan pada titrasi hidrolisis, larutan besi Fe^{2+} dan Fe^{3+} ditambahkan secara bertahap ke dalam larutan alkalin (X.-M. Li et al., 2011).

Ukuran partikel, bentuk dan komposisi dari nanopartikel magnetik bergantung pada jenis garam yang digunakan (contoh: garam klorida, sulfat dan nitrat, rasio Fe^{2+}/Fe^{3+} , temperatur reaksi, tipe *stabilizing agent*, besar pH, dan besar ikatan ionik pada media (larutan). Mengacu pada konsep termodinamika pada reaksi ini, presipitasi akan selesai pada rentang pH antara 8 – 14 dan rasio stoikiometri Fe^{2+}/Fe^{3+} 1:2 pada lingkungan *non-oxidizing*. Magnetit sensitif

terhadap oksigen, jika dibiarkan pada udara terbuka memungkinkan terjadinya oksidasi Fe_3O_4 menjadi $\text{Fe}(\text{OH})_3$ atau maghemite (Fe_2O_3) seperti pada **Gambar 2.12** dan kehilangan sifat magnetiknya. Disisi-lain, magnetit yang berubah menjadi maghemit dikarenakan adanya ion H^+ . Maka untuk menghindari terjadinya oksidasi magnetit, kontrol pH saat pencampuran harus dilakukan dengan teliti. Kelebihan utama dari metode ini ialah bisa menghasilkan kuantitas endapan yang banyak dan rentang ukuran antarpartikel yang terbentuk kecil. Nanopartikel bisa disintesis dengan atau tanpa *surfactant* mengingat kontrol pH dan eliminasi oksigen lebih penting dalam proses ini (X.-M. Li et al., 2011).



Gambar 2.12 Preparasi oksida besi dan kemungkinan reaksi oksidasinya (X.-M. Li et al., 2011).

2.5.2. Sintesis hidrotermal

Sintesis hidrotermal biasanya digunakan untuk sintesis *single crystal* dari mineral dengan media air panas dibawah tekanan tinggi menggunakan *autoclave*. Pada sintesis hidrotermal, biasanya digunakan satu *precursor ferrous* di awal proses. Secara umum, dalam sintesis ini menghasilkan ukuran partikel yang lebih besar daripada metode kopresipitasi (X.-M. Li et al., 2011). Preparasi SPIONs dari senyawa $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ dengan metode sintesis hidrotermal menggunakan *surfactant polyvinylpyrrolidone* (PVP) menunjukkan hasil nanopartikel dengan ukuran diameter rata-rata 80 nm. Nanopartikel memiliki sifat feromagnetik dengan *remanent magnetization* 12,5 emu/g (Zhang et al., 2008).

Disisi lain, beberapa penelitian melaporkan kontrol ukuran nanopartikel melalui kontrol temperatur reaksi pada temperatur yang lebih tinggi menghasilkan ukuran partikel yang lebih besar (J. Wang et al., 2003). Perlu dicatat bahwa perilaku feromagnetik akan berbeda dengan tingkat kristalinitasnya yang tinggi. Secara keseluruhan, sintesis hidrotermal dapat menghasilkan partikel dengan kristalinitas tinggi dan morfologi terkontrol, tetapi nanopartikel yang dihasilkan lebih besar jika dibandingkan dengan metode kopresipitasi. Perlu dicatat bahwa nanopartikel magnetik yang besar terutama lebih besar dari 50 nm dapat menampilkan perilaku feromagnetik bukan perilaku superparamagnetik, yang mungkin menjadi masalah tersendiri (X.-M. Li et al., 2011).

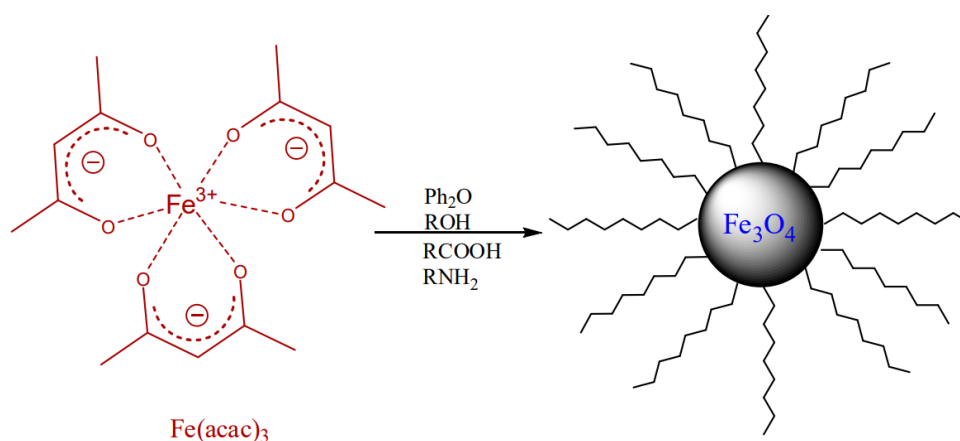
2.5.3. Sintesis solvotermal

Sintesis solvotermal mirip dengan sintesis hidrotermal, namun digunakan pelarut organik sebagai media dispersi, bukan air. Dibandingkan dengan sintesis hidrotermal, penggunaan

pelarut organik tidak hanya memperluas lingkup pemilihan bahan, tetapi juga memungkinkan reaksi yang tidak memungkinkan untuk sintesis hidrotermal. Struktur *metastable*, seperti paduan Fe-Cu mungkin disiapkan menggunakan metode ini. Pemilihan pelarut, *precursor* yang sesuai, temperatur reaksi, waktu reaksi dan waktu *aging* sangat penting pengaruhnya terhadap ukuran partikel, bentuk dan distribusi. Selain itu, sintesis solvotermal dapat secara efektif menghindari adsorpsi anion dan kation pada permukaan nanopartikel, sehingga menghindari pengotor yang terdapat di metode hidrotermal dan kopresipitasi (X.-M. Li et al., 2011).

Sintesis solvotermal telah menunjukkan kemampuan yang signifikan dalam melakukan kontrol morfologi nanopartikel. Sebagai contoh, Jana et al., melakukan penelitian mengenai sintesis *magnetic iron oxide dots* dan *cubes* dari *pyrolysis iron oleate* pada temperatur 300 °C menggunakan 1-octadecene sebagai media pelarut. Hasilnya menunjukkan ukuran partikel dan morfologinya bergantung pada kelebihan dari *oleic acid* dan lama reaksi. Proses ini juga telah dilakukan pada preparasi nanokristal magnetik lainnya seperti Cr₂O₃, MnO, Co₃O₄, dan NiO (Jana et al., 2004).

Selain mampu mengontrol ukuran dan morfologi, sintesis solvotermal mampu menghasilkan partikel hidrofobik secara langsung, yang mana hasil ini tidak mungkin dicapai menggunakan metode kopresipitasi. Sun et al., melakukan penelitian penggunaan Fe(acac)₃ untuk preparasi SPIONs dengan penambahan alkohol, *oleic acid* dan *oleylamine* dengan temperatur pencampuran mencapai 265 °C (**Gambar 2.13**). Nanopartikel ini larut dalam pelarut non-polar (Sun & Zeng, 2002).



Gambar 2.13 Preparasi *monodisperse* SPIONs dengan penambahan alkohol, *oleic acid* dan *oleylamine* dengan sintesis solvotermal menggunakan Besi (III) (Sun & Zeng, 2002).

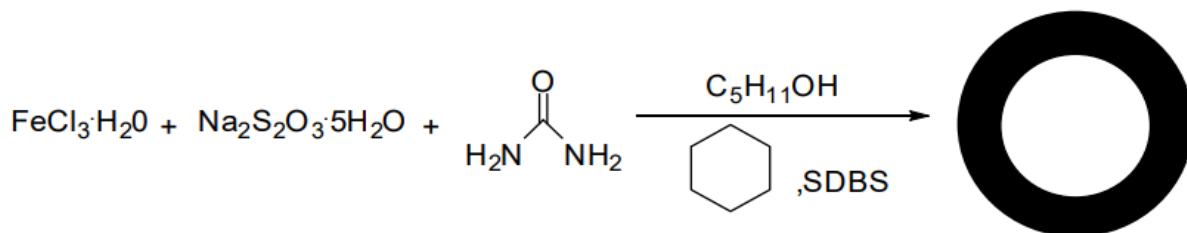
Penelitian yang lebih lanjut menunjukkan metode ini tidak hanya terbatas pada oksida besi, namun juga bisa diterapkan pada nanopartikel ferit seperti MFe₂O₄ (M= Fe, Co, Mn) (Sun et al., 2004).

Secara keseluruhan sintesis solvothermal menghasilkan partikel yang lebih besar yang disebabkan oleh reaksi yang berkepanjangan sehingga terjadi aglomerasi saat inkubasi. Tetapi, penambahan *surfactant* membantu mereduksi ukuran partikel karena *surfactant* mampu mencegah pertumbuhan nanopartikel yang berukuran kecil dengan men-adsorpsi permukaan partikel. *Surfactant* mampu meningkatkan stabilitas nanopartikel dari terjadinya agregasi dan bahkan memberikan respon tolak menolak dalam kasus spesi ionik (X.-M. Li et al., 2011).

2.5.4. Microemulsion

Microemulsion terbentuk dari pencampuran *surfactant*, *co-surfactant*, pelarut dan air (atau larutan *aqueous base*). *Microemulsion* bisa digunakan dalam preparasi nanopartikel dari 2 pelarut yang tidak bereaksi akibat kehadiran *surfactant*. Preparasi SPIONs dengan

microemulsion efektif untuk menghindari aglomerasi partikel sehingga menghasilkan partikel yang ukuran dan morfologinya seragam serta mempunyai dispersitas yang baik. *Microemulsion* bisa digunakan untuk mengontrol ukuran nanopartikel dengan mengatur rasio minyak/air. Disisi-lain, morfologi dari partikel yang dihasilkan dapat di kontrol melalui pengaturan pH saat pencampuran/reaksi (X.-M. Li et al., 2011). Sebagai contoh Zhou et al., melakukan penelitian penggunaan emulsi minyak dalam air untuk mensintesis SPIONs dengan *cyclohexane* sebagai fase minyak, *polyoxyethylene isooctyl ether phosphate* (NP5) dan *nonoxynol-9 phosphate* (NP9) sebagai *surfactant*, $\text{FeSO}_4/\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ sebagai prekursor *aqueous*. Mereka menemukan partikel seperti jarum pada pH = 8.5, campuran partikel bola dan batang seperti jarum pada pH = 10.5, dan partikel bola pada pH = 13.5, yang mungkin terkait dengan bentuk perubahan misel dengan nilai pH media. Hasilnya menunjukkan pada pH = 8.5 terbentuk partikel seperti jarum, pada pH = 10.5 terbentuk partikel campuran yang berbentuk bola dan batang seperti jarum, dan pada pH = 13.5 terbentuk partikel berbentuk bola (Zhou et al., 2001). Pada penelitian yang dilakukan oleh Zhang, et. al., menggunakan $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ sebagai prekursor dengan penambahan $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ dan urea yang dilarutkan dalam air sebagai *aqueous solution*. Kemudian dituangkan pada SBDS, *n-pentanol* dan *cyclo-hexane* pada pengadukan 400 rpm selama 10 menit. Selanjutnya larutan dituangkan pada teflon untuk dipanaskan pada temperature 160 °C selama 12 jam dan kemudian didinginkan, disaring dan dicuci menggunakan air dan *acetone* dan akhirnya dikeringkan pada *vacuum oven* selama 12 jam pada temperatur 40 °C (Zhang et al., 2008). Hasilnya menunjukkan partikel yang berbentuk *hollow sphere* yang bersifat feromagnetik bukan *superparamagnetic*.



Gambar 2.14 Nanopartikel berbentuk *hollow spherical* hasil sintesis *microemulsion* (Zhang et al., 2008).

Secara keseluruhan sintesis menggunakan *microemulsion* memberikan keuntungan dalam melakukan kontrol ukuran partikel melalui pengaturan fase *aqueous*. Dengan melakukan kontrol yang tepat, berbagai morfologi dapat diperoleh. Namun perlu dilakukan *treatment* lanjutan untuk modifikasi sifat magnetik akibat perubahan morfologi partikel (X.-M. Li et al., 2011).

2.5.5. Sintesis sonochemical

Sintesis *sonochemical* menggunakan aktivasi ultrasonik dalam *internal liquid* untuk menghasilkan temperatur tinggi sementara dan tekanan parsial tinggi disertai dengan efek mikro seperti *shock waves*, yang dapat menyebabkan terjadinya oksidasi, reduksi, dekomposisi, dan hidrolisis. Dengan demikian, frekuensi ultrasonik, durasi sonikasi, dan temperatur reaksi adalah parameter penting dalam mengendalikan ukuran partikel, morfologi dan sifat magnetik partikel (X.-M. Li et al., 2011).

Sebagai contoh Vijayakumar et al., melaporkan penelitiannya pada sintesis SPIONs dengan ukuran partikel rata-rata 10 nm dari besi (II) asetat yang dilarutkan dalam *deoxygenized water* yang diradiasi dengan *ultrasonic horn* ber-intensitas tinggi (20 kHz) di bawah tekanan 1.5 atm pada temperature 25 °C. Mekanisme pembentukan nanopartikel Fe_3O_4 diperkirakan dari molekul air yang berubah menjadi hidrogen peroksida saat terjadi absorpsi ultrasounik

yang mengoksidasi Fe (II) yang mengarah ke pembentukan nanopartikel SPIONs (Vijayakumar et al., 2000).

Zhu et al., meneliti tentang sintesis *sonochemical* pada nanopartikel MFe_2O_4 ($M = Fe, Zn$) dari larutan *aqueous* $FeCl_2/urea$ (atau $ZnCl_2/FeCl_2/urea$). Produk akhir Fe_3O_4 dan $ZnFe_2O_4$ berdiameter 15-20 nm dan 20-50 nm (Zhu et al., 2008).

Selain kelima metode diatas masih terdapat metode lain seperti sol-gel, metode elektrokimia, sintesis *flow injection*, metode aerosol, *microwave assisted synthesis* yang bisa digunakan untuk preparasi SPIONs dengan kontrol morfologi. Bagaimanapun juga pemilihan metode bergantung pada aplikasinya meliputi ukuran partikel, kristalinitas, solubilitas dan fungsi (Aghazadeh et al., 2017; Byeon & Park, 2016; Jiao et al., 2015; Zhan et al., 2018; Zhong et al., 2017).

2.6 Penelitian sebelumnya mengenai sintesis nanopartikel Fe_3O_4

Beberapa penelitian sebelumnya mengenai preparasi Fe_3O_4 dapat dilihat pada tabel berikut:

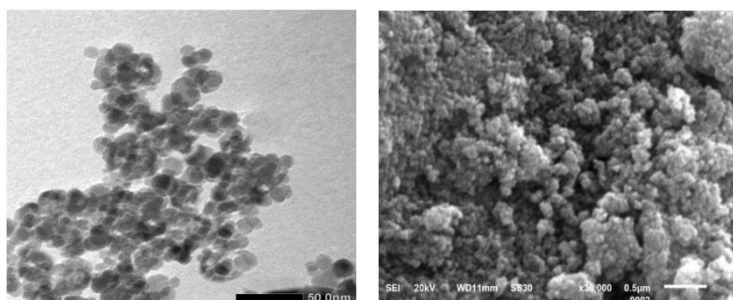
Tabel 2.8 Penelitian sebelumnya tentang sintesis Fe_3O_4 menggunakan metode kopresipitasi.

No	Material	Modifikasi Permukaan	Temperatur Annealing (°C)	Kemurnian Fe_3O_4 (%)	Ukuran Partikel (nm)	Saturation Magnetization (emu/g)
1	<i>Ferrous dan ferric</i>	–	70	100	5 – 20	89,56
2	<i>Ferrous dan ferric</i>	–	50	100	63,4 – 137	–
3	<i>Ferrous dan ferric</i>	PEG	50	100	36,2 – 71,2	–
4	<i>Ferrous dan ferric</i>	CTAB	50	100	34,5 – 65,1	–
5	<i>Ferrous dan ferric</i>	DA	100	100	25	35,6
6	Pasir alam Fe_3O_4	PEG	70	48,39	14,90	47,4
7	Pasir alam	DA	100	100	7,31	1,2

Hariani, et. al. melaporkan preparasi nanopartikel Fe_3O_4 menggunakan $FeCl_3$, $FeCl_2$, dan NaOH sebagai titran. Preparasi dilakukan melalui larutan garam klorida dari dari besi (II) dan besi (III)-nya yang dikopresipitaskan dengan penambahan gas N_2 . 16.25 gram $FeCl_3$ dan 6.35 gram $FeCl_2$ dilarutkan dalam 200 ml *deionized water*. Campuran diaduk dalam 60 menit setelah itu presipitat mulai terbentuk pada temperatur $30^\circ C$ melalui penambahan 2 M NaOH . Reaksi dijaga pada temperatur $70^\circ C$ selama 5 jam dan pH sekitar 12. Presipitasi Fe_3O_4 selesai pada pH antara 8 – 14. Campuran di dinginkan sampai temperatur kamar dan precipitat dipisahkan

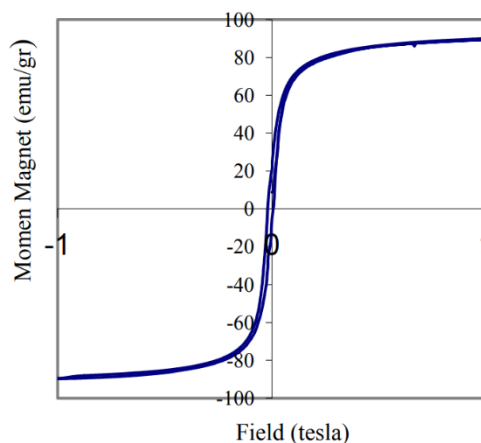
menggunakan magnet permanen dan dicuci menggunakan air hingga pH-nya netral. Kemudian sampel dicuci menggunakan *acetone* dan dipanaskan didalam oven pada 60 – 70 °C (Hariani et al., 2013).

Hasilnya sampel dikarakterisasi menggunakan XRD menunjukkan kecocokan dengan struktur spinel dari Fe_3O_4 murni dengan bidang (220), (311), (400), (422), (511) dan (440) sesuai dengan JCPDS file PDF no.65-3107. Peak yang ada menunjukkan tidak adanya pengotor yang terdeteksi oleh mesin XRD. Untuk mengetahui morfologinya sampel diuji menggunakan SEM dan TEM. Dari uji SEM memperlihatkan bahwa sampel menghasilkan partikel yang sangat kecil, dan dari hasil uji TEM menunjukkan bahwa ukuran partikel berkisar diantara 5 – 20 nm.



Gambar 2.15 Hasil uji TEM dan SEM

Untuk mengetahui sifat magnetiknya digunakan instrument pengujian VSM (*Vibrating Sample Magnetometers*). **Gambar 2.16** Hasil uji VSM **dari sampel** (Hariani et al., 2013). menunjukkan bahwa sampel memiliki kurva superparamagnetik dengan nilai *magnetic moment* mencapai 89.46 emu/gram.



Gambar 2.16 Hasil uji VSM dari sampel (Hariani et al., 2013).

Shokuhfar et. al., melakukan penelitian yang sama namun dengan penambahan *surfactant cetyl trimethyl ammonium bromide* (CTAB) dan *polyethylene glycol* (PEG). Hasil dari sintesis dapat dilihat pada **Tabel 2.9**. Pengaruh penambahan *surfactant* terhadap morfologi bentuk partikel menunjukkan PEG cenderung mengubah *spherical-shape particle* menjadi *rod-shape particle* sedangkan CTAB tidak memiliki pengaruh terhadap bentuk partikel (Shokuhfar et al., 2008). Penambahan *surfactant* juga tidak mempengaruhi hasil akhir sintesis. Dari pengujian XRD ketiga sampel, pola XRD yang dihasilkan ialah sama yaitu Fe_3O_4 .

Tabel 2.9 Ukuran rata-rata sintesis Fe_3O_4 tanpa dan menggunakan *surfactant* (Shokuhfar et al., 2008).

<i>Surfactant</i>	Ukuran rata-rata partikel (nm)
-	104,7
1 gram CTAB	54,1
1 gram PEG	44,7

Penelitian lain menggunakan *soft template dyethylamine* (DA) untuk proses sintesinya. 0,03 molar *ferrous* dicampur dengan 0,06 molar *ferric* dengan pengadukan pada temperatur 30 °C. DA dengan konsentrasi 5 Normal sebanyak 5 ml ditambahkan ke dalam larutan kemudian diikuti titrasi hingga pH campuran menjadi 11. Hasil endapan kemudian dicuci menggunakan air dan metanol dan dipanaskan didalam oven pada temperatur 100 °C selama 72 jam (Ahmad et al., 2009).

Mengacu pada termodinamika pembentukan Fe_3O_4 , presipitasi akan selesai dengan mengatur pH, mengatur rasio ion Fe^{3+} : Fe^{2+} sehingga kontrol ukuran, bentuk dan morfologi bergantung pada media yang digunakan. Pada temperatur kamar, ketika DA ditambahkan pada larutan yang mengandung Fe^{2+} dan Fe^{3+} dengan pH sekitar 11, Fe^{2+} dan Fe^{3+} terkonversi menjadi senyawa hidroksida. Untuk menghindari aglomerasi maka pembentukan Fe_3O_4 dilakukan didalam DA. Saat nukleisasi DA berfungsi sebagai *soft template* untuk mendapatkan ukuran nanopartikel Fe_3O_4 yang seragam dan sangat halus dan juga DA lebih mudah untuk dihilangkan setelah reaksi selesai. Hasil dari preparasi ini memiliki ukuran rata-rata 25 nm dengan *magnetization* yang kecil sebesar 35,6 emu/g dan gaya koersifitas 116 Oe (Ahmad et al., 2009).

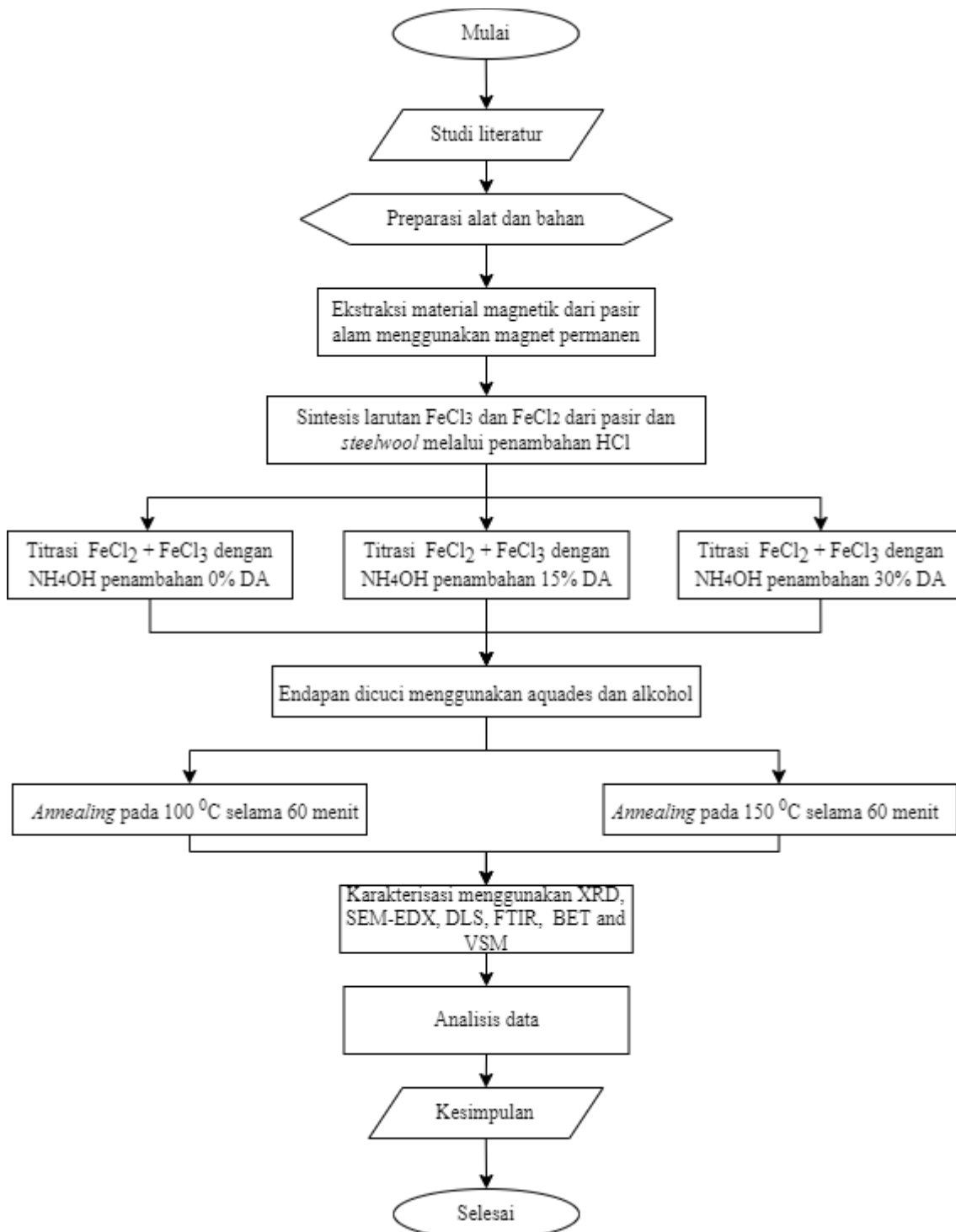
Penelitian lainnya melakukan sintesis Fe_3O_4 menggunakan metode yang sama, menggunakan pasir besi alam yang mengandung Fe_3O_4 dengan penambahan PEG menunjukkan penambahan PEG dengan perbandingan 1:3 menghasilkan partikel berukuran 14.90 nm namun kemurniannya hanya 48.39% (Bukit et al., 2015). Taufiq, et. al. mengganti PEG dengan DA menunjukkan *crystallite size* mencapai 7,31 nm dengan persentase DA 33,33%, namun magnetisasi-nya masih sangat kecil yaitu 1.2 emu/g (Taufiq et al., 2018).

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB III METODOLOGI PENELITIAN

3.1 Diagram Alir

Penelitian mengikuti diagram alir sebagai berikut:



Gambar 3.1 Diagram alir penelitian.

3.2 Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan pada penelitian ini ialah sebagai berikut:

1. Pasir besi alam
2. *Steelwool*
3. HCL 37%
4. NH₄OH 25%
5. Dietilamin (DA)
6. Deionized water
7. Alkohol

3.3 Alat Penelitian

Alat-alat yang digunakan untuk penelitian ini antara lain:

1. Gelas elenmeyer 250 ml
2. Baker glass 50 ml, 100 ml, 500 ml, 1000 ml
3. Gelas ukur 10 ml, 20 ml, 50 ml, 100 ml, 250 ml
4. Pipet ukur
5. Cawan petri
6. Mortar
7. Kertas saring
8. Statif dan buret
9. Magnet permanen
10. Neraca digital
11. *Mechanical Stirer*
12. *Vacuum furnace*
13. Sonikator
14. Instrumen *X-ray Diffractometer (XRD)*
15. Instrumen *Fourier Transforms Infrared Spectroscopy (FTIR)*
16. Instrumen *Scanning Electron Microscopy (SEM)*
17. Instrumen *Brunauer-Emmet-Teller (BET)*
18. Instrumen *Superconducting Quantum Interference Devicei (SQUID)*

3.4 Metode Penelitian

Metode sintesis Fe₃O₄ dilakukan menggunakan metode kopresipitasi sederhana. Terdapat 2 tahap dalam metode ini yaitu:

3.4.1 Ekstraksi material magnetik dari pasir besi alam

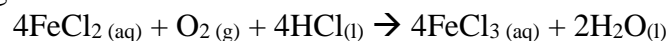
1. Memisahkan material magnetik dari pasir besi menggunakan magnet pemanen
2. *Grinding* menggunakan mortar untuk mendapatkan partikel yang lebih kecil dan homogen
3. Uji komposisi material magnetik menggunakan *X-ray Fluoresence Spectrometer* dan EDX untuk mengetahui komposisi Fe atau Fe₃O₄.

3.4.2 Membuat larutan FeCl₃ dan FeCl₂

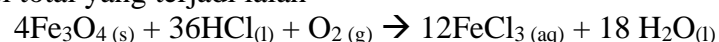
1. Larutan FeCl₃ dibuat dengan melarutkan material magnetik Fe₃O₄ kedalam HCl 37% berlebih. Reaksi yang terjadi mengikuti:



Reaksi dilakukan di udara terbuka sehingga FeCl₂ mudah teroksidasi menjadi FeCl₃ didalam lingkungan asam.



Sehingga reaksi total yang terjadi ialah

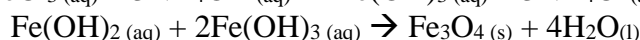
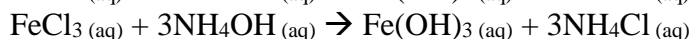
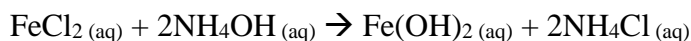


2. Larutan FeCl₂ dibuat dengan melarutkan *steelwool* yang telah diketahui kandungan Fe-nya kedalam HCl 37%. Reaksi yang terjadi mengikuti:
$$\text{Fe}_{(s)} + 2\text{HCl}_{(l)} \rightarrow \text{FeCl}_{2(aq)} + \text{H}_{2(g)}$$
3. Larutan FeCl₂ dan FeCl₃ yang dihasilkan diencerkan menggunakan aquades hingga molaritas kedua larutan sama. Pada penelitian ini molaritas kedua larutan dibuat 1 Molar.

3.4.3 Nano-sizing (titrasi)

Nanosizing dilakukan dengan mentitrasi campuran larutan FeCl₂ dan FeCl₃ menggunakan NH₄OH 25%. Langkah-langkah-nya sebagai berikut:

1. Menyiapkan *mechanical stirrer* pada baker gelas yang telah terisi air 100 ml
2. Menambahkan FeCl₂ kedalam air, diikuti dengan penambahan FeCl₃ pada baker glass dengan perbandingan 1:2 dibawah pengadukan pada 520 rpm
3. Menambahkan dietilamin (DA) dengan beberapa variasi fraksi volume total campuran FeCl₂ dan FeCl₃ mengikuti rancangan penelitian
4. Titrasi dengan larutan basa NH₄OH untuk mendapatkan presipitat hingga pH = 10.5. Reaksi yang terjadi saat titrasi ialah:



Saat titrasi selesai terbentuk endapan berwarna hitam yang menandakan Fe₃O₄ sudah terbentuk.

5. Mencuci precipitat menggunakan *dionized water* dan etanol
6. Masing-masing variasi %DA dilakukan *annealing* pada temperatur 100 °C dan 150 °C dengan waktu 60 menit untuk mendapatkan serbuk Fe₃O₄
7. Karakterisasi menggunakan instrumen XRD, FTIR, SEM-EDX, BET, dan VSM.

3.5 Pengujian

Instrument pengujian yang digunakan pada penelitian ini antara lain:

3.5.1 X-Ray Diffractometry (XRD)

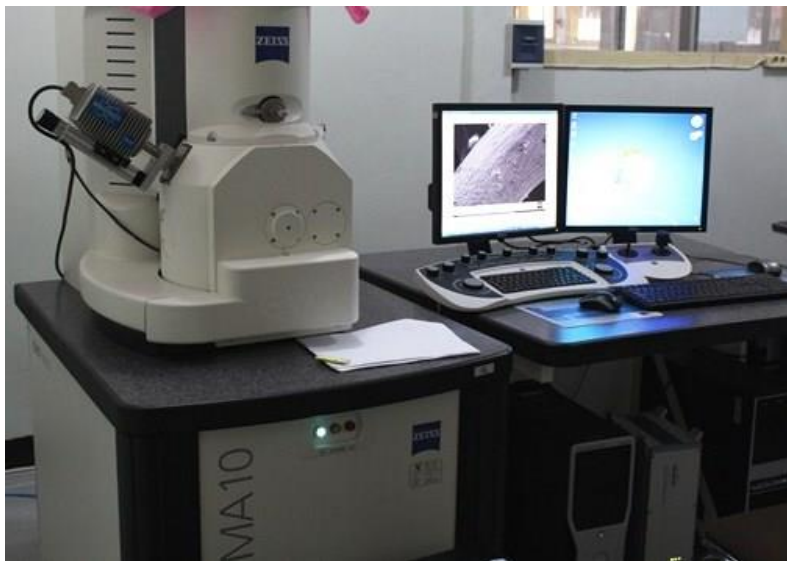
Difraksi sinar-X merupakan metode analisa yang memanfaatkan interaksi antara sinar-X dengan atom yang tersusun dalam sebuah system kristal. Analisa XRD merupakan analisa yang digunakan untuk mengidentifikasi keberadaan suatu senyawa dengan mengamati pola pembiasan cahaya sebagai akibat dari berkas cahaya yang dibiaskan oleh material yang memiliki susunan atom pada kisi kristalnya. Pada penelitian ini XRD digunakan untuk mengetahui kemurnian senyawa Fe₃O₄ dan mendapatkan ukuran kristal-nya. Metode yang digunakan ialah metode *Debye-Scherrer* (metode serbuk). Pada metode serbuk, sudut θ yang diubah-ubah sedangkan λ dibuat tetap. Hal tersebut dilakukan dengan dengan mengubah-ubah arah datangnya berkas sinar-X tanpa mengganti plat logam sumber sinar-X agar dihasilkan λ yang tetap (Waseda et al., n.d.). Pengujian XRD dilakukan di Teknik Material dan Metalurgi ITS menggunakan instrument dari *Malvern PANalytical Xpert Pro MPD* yang ditunjukkan oleh **Gambar 3.2**.



Gambar 3.2 Instrumen XRD Malvern PANalytical Xpert Pro MPD.

3.5.2 Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)

Analisa SEM-EDX dilakukan untuk memperoleh gambaran permukaan atau fitur material dengan resolusi yang sangat tinggi hingga memperoleh suatu tampilan dari permukaan sampel yang kemudian di komputasikan dengan *software* untuk menganalisis komponen materialnya baik dari kuantitatif mau pun dari kualitatifnya (Ellingham et al., 2018). Pengujian SEM-EDX dilakukan di Teknik Material ITS dan Laboratorium Instrumentasi UPN Veteran Jawa Timur.



Gambar 3.3 Instrumen SEM-EDX.

3.5.3 Dynamic Light Scattering (DLS)

Dynamic Light Scattering (DLS), disebut juga dengan *Quasi Elastic Light Scattering* (QELS) atau *Photon Correlation Spectroscopy* (PCS) merupakan teknologi noninvasif, cepat, tepat, andal, yang dapat digunakan untuk mengukur dan meneliti jumlah distribusi molekul dalam wilayah submicron (Hernández-Rodríguez, 2019). DLS bekerja berdasarkan prinsip pengukuran gerakan partikel Brown (*Brownian Motion*) dan mengkorelasikan gerakan dengan ukuran partikel. Pengukuran ukuran partikel menggunakan DLS dapat diperoleh dalam satu atau dua menit secara akurat, baik. DLS baik digunakan untuk menentukan ukuran molekul

dalam kisaran 10 μm hingga kurang dari 1 nm (Alexander & Dalgleish, 2006). Pengujian DLS dilakukan di Laboratorium Fisika Material Departemen Fisik ITS.



Gambar 3.4 *Malvern instrument zetasizer nano range.*

3.5.4 Brunauer-Emmett-Teller (BET)

Instrumen BET berfungsi untuk menentukan diameter dan volume pori, serta luas permukaan spesifik material berdasarkan prinsip adsorpsi-desorpsi gas adsorbat. Mekanisme adsorpsi gas tersebut berupa penyerapan gas (nitrogen, argon dan helium) pada permukaan suatu bahan padat yang akan dikarakterisasi pada suhu tetap. Jika diketahui volume gas (nitrogen, argon, atau helium) yang dapat diserap oleh suatu permukaan padatan pada suhu dan tekanan tertentu dan diketahui secara teoritis luas permukaan dari satu molekul gas yang diserap, maka luas permukaan total padatan tersebut dapat dihitung. Pada analisis luas permukaan menggunakan uji SAA, sering digunakan gas nitrogen (Hwang & Barron, 2011). Pengujian BET dilakukan di Laboratorium Energi dan Lingkungan ITS dengan merk *Quantachrome*.



Gambar 3.5 *Instrumen BET Quantachrome.*

3.5.5 *Fourier-Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)*

Spektroskopi inframerah didasarkan pada fenomena terabsorpsinya radiasi elektromagnetik inframerah oleh vibrasi molekul. Spektroskopi vibrasi ini merupakan teknik yang cukup handal untuk menganalisis struktur molekul. Spektroskopi vibrasi dapat digunakan untuk menganalisis struktur material organik maupun anorganik. Metode spektroskopi inframerah berguna untuk karakterisasi material, karena material tertentu (material hasil sintesa atau material alami) menyerap radiasi inframerah. Spektrum serapan inframerah suatu material mempunyai pola yang khas, dan berguna untuk identifikasi material dan identifikasi keberadaan gugus-gugus fungsi yang ada (Smith, 2011). Pengujian FTIR dilakukan di Laboratorium Karakterisasi Lanjut I Kimia, Puspiptek, Serpong, Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN).



Gambar 3.6 Instrumen FTIR.

3.5.6 *Vibrating-Sample Magnetometer (VSM)*

VSM adalah merupakan salah satu alat ukuran magnetisasi yang bekerja berdasarkan metoda induksi. VSM merupakan salah satu jenis peralatan yang digunakan untuk mempelajari sifat magnetik bahan. Dengan alat ini akan dapat diperoleh informasi mengenai besaran-besaran sifat magnetik sebagai akibat perubahan medan magnet luar yang digambarkan dalam kurva histeresis, sifat magnetik bahan sebagai akibat perubahan suhu, dan sifat-sifat magnetik sebagai fungsi sudut pengukuran atau kondisi anisotropik bahan. Sampel dimagnetisasi dengan medan magnet homogen. Jika sampel bersifat magnetik, maka medan magnet akan memagnetisasi sampel dengan meluruskan domain magnet. Momen dipol magnet sampel akan menciptakan medan magnet di sekitar sampel. Data yang diperoleh dari karakterisasi sifat magnet berupa kurva histeresis dengan sumbu x merupakan medan magnet yang menginduksi sampel dalam satuan Oe dan sumbu y merupakan magnetisasi sampel dalam satuan emu/gram (Lopez-Dominguez et al., 2018). Pengujian VSM dilakukan di Laboratorium Karakterisasi Lanjut I, Pusat Penelitian Fisika, Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN), Serpong.



Gambar 3.7 Instrumen VSM.

3.6 Rancangan Penelitian

Penelitian dilakukan dengan menggunakan variasi fraksi volume DA dan temperatur *annealing* yang dibagi menjadi 6 sampel sebagai berikut:

Tabel 3.1 Kode sampel dan variasi perlakuan sampel

Kode sampel	% Volume <i>dietilamine</i>	Temperature <i>annealing</i> ($^{\circ}\text{C}$)	Lama <i>annealing</i> (menit)
A1	0	100	60
A2	15	100	60
A3	30	100	60
B1	0	150	60
B2	15	150	60
B3	30	150	60

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

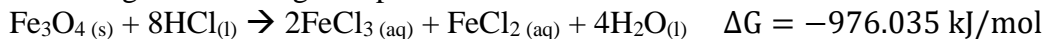
BAB IV PEMBAHASAN DAN ANALISA DATA

4.1 Stoikiometri Reaksi

Sebelum dilakukan perhitungan, sampel pasir terlebih dahulu diuji kandungan unsurnya menggunakan alat karakterisasi EDX. Hasil karakterisasi dapat dilihat pada 4.2.2 yang menunjukkan kandungan Fe sebesar 30.84% dan O sebesar 32.50%. Kandungan oksigen pada pada sampel pasir merupakan akumulasi dari oksida logam lainnya, sehingga untuk mengetahui persentase Fe₃O₄ perlu diketahui terlebih dahulu persen oksigen yang terdapat pada Fe₃O₄.

4.1.1 Menentukan konsentrasi larutan FeCl₃

Pasir digunakan untuk membuat larutan FeCl₃, dimana pasir mengandung Fe₃O₄. Fe₃O₄ direaksikan dengan HCl mengikuti persamaan reaksi berikut:



Nilai dari energi Gibbs reaksi diatas bernilai negatif yang mengartikan reaksi secara spontan terjadi. Untuk mendapatkan mol produk, kandungan Fe₃O₄ pada pasir perlu dihitung terlebih dahulu. Dengan menggunakan perhitungan rumus empiris sederhana yaitu:

	Fe	O
Mol	3	4
Persen	30.84	x

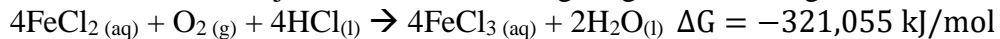
$$n \text{ Fe} = \frac{30.84}{\text{Ar Fe}} = \frac{30.84}{55.85} = 0.5522$$

$$n \text{ O} = \frac{4}{3} n \text{ Fe} = \frac{4}{3} (0.5522) = 0.73625$$

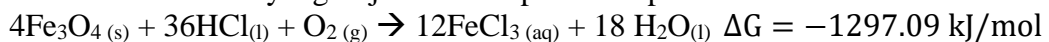
$$n \text{ O} = \frac{\% \text{ O}}{\text{Ar O}} \rightarrow \% \text{ O} = n \text{ O} \times \text{Ar O}$$

$$\% \text{ O} = 0.73625 \times 16 = 11.78\%$$

Persentase Fe₃O₄ didalam sampel ialah **42.62%**. Reaksi dilakukan di udara terbuka sehingga FeCl₂ mudah teroksidasi menjadi FeCl₃ didalam lingkungan asam mengikuti reaksi:



Reaksi diatas juga memiliki energi Gibbs yang negatif sehingga reaksi diatas berjalan dengan spontan. Maka reaksi total yang terjadi dalam pelarutan pasir kedalam HCl ialah:

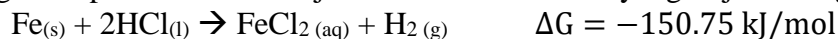


Dengan menggunakan persamaan reaksi diatas, konsentrasi FeCl₃ dapat diketahui. HCl berlebih digunakan pada reaksi ini untuk memastikan seluruh Fe₃O₄ larutan.

4.1.2 Menentukan konsentrasi larutan FeCl₂

Selanjutnya untuk membuat larutan FeCl₂ dari *steelwool*, kandungan Fe pada *steelwool* diuji terlebih dahulu menggunakan instrument XRF yang terlampir pada LAMPIRAN.

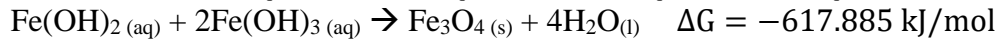
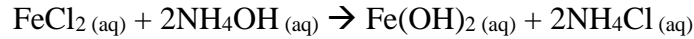
Kandungan Fe pada XRF menunjukkan 96.18%. Reaksi yang terjadi mengikuti:



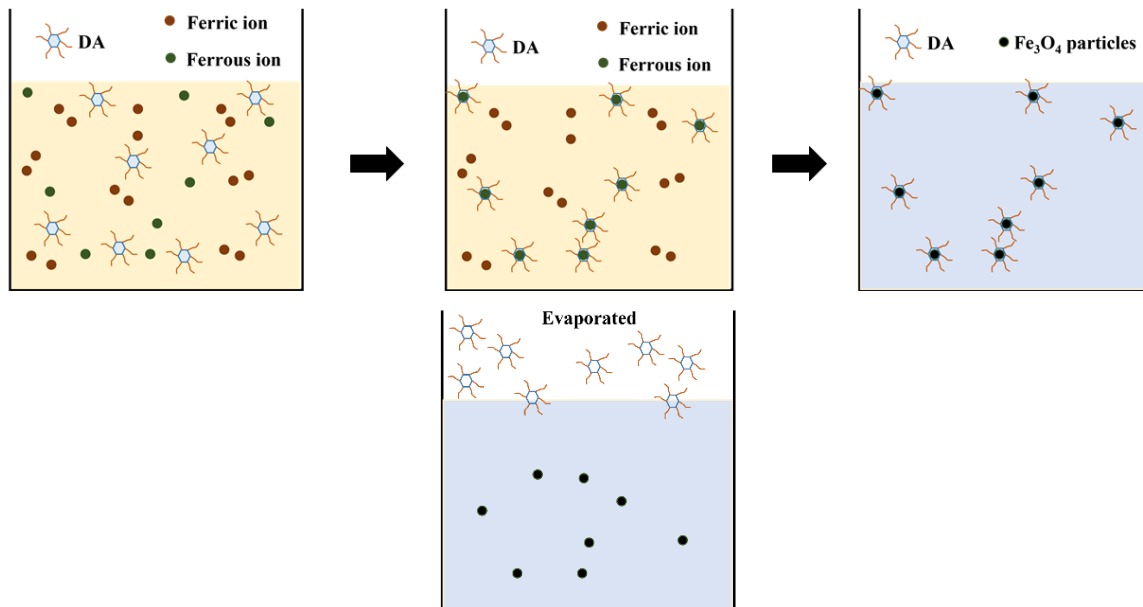
Pada reaksi diatas FeCl₂ tidak teroksidasi dikarenakan gas H₂ mampu mencegah kontak O₂ terhadap larutan (Alcaraz et al., 2021). Dengan menggunakan persamaan reaksi diatas, konsentrasi FeCl₂ dapat didefinisikan. Pembuatan larutan FeCl₂ dilakukan tepat sebelum netralisasi untuk menghindari oksidasi Fe(II).

4.1.3 Reaksi netralisasi

Larutan FeCl₃ dan FeCl₂ diencerkan hingga konsentrasi kedua larutan sama. Kemudian kedua larutan dicampur dengan rasio perbandingan volume 2:1. DA ditambahkan sebelum titrasi menggunakan NH₄OH sesuai variasi, kemudian campuran dititrasi menggunakan NH₄OH hingga pH = 10.5. Reaksi yang terjadi ialah sebagai berikut:



Ketiga reaksi diatas terjadi secara spontan yang dikonfirmasi dari nilai energi Gibbs-nya yang negatif. Penambahan DA memiliki tujuan untuk menghindari terjadinya oksidasi dan aglomerasi seperti yang ditunjukkan oleh **Gambar 4.1** Penggunaan DA juga berfungsi untuk mengontrol komposisi dan bentuk partikel. Pada saat proses sintesis DA bertindak sebagai *soft template* menghasilkan partikel Fe_3O_4 dengan ukuran yang seragam dan halus. Setelah proses sintesis DA mudah untuk dihilangkan melalui *annealing* (Ahmad et al., 2009).



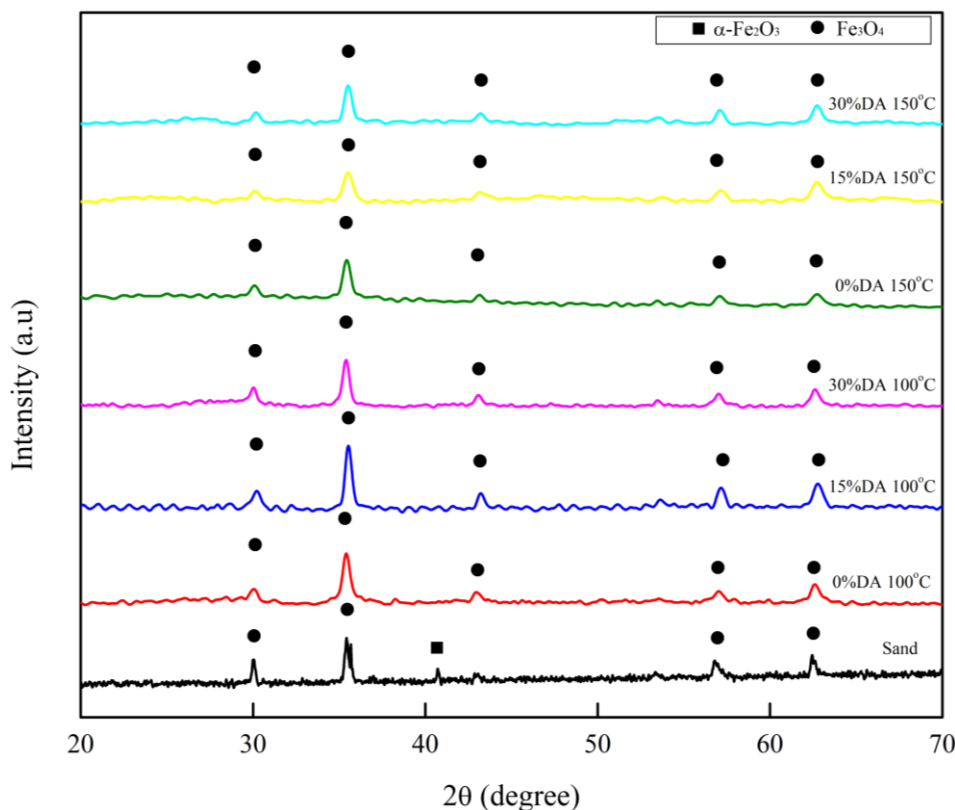
Gambar 4.1 Skema DA pada proses netralisasi.

4.2 Kemurnian nano- Fe_3O_4 hasil sintesis

Kemurnian senyawa Fe_3O_4 pada sampel dianalisis menggunakan pengujian XRD, EDX, dan FTIR. Pola XRD yang didapatkan dikonfirmasi dengan pola XRD nano- Fe_3O_4 berdasarkan nomor JCPDS dan beberapa penelitian sebelumnya tentang nano- Fe_3O_4 . EDX digunakan untuk mengetahui persentase kandungan unsur yang dikonfirmasi dengan spektra *infrared* dari hasil pengujian FTIR dengan menganalisis gugus fungsi yang terdapat pada sampel.

4.2.1 Hasil pengujian XRD

Pengujian XRD dilakukan pada pasir magnetik hasil ekstraksi dan sampel hasil sintesis. Pengujian dilakukan menggunakan *diffractometer* dengan radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ pada 30 kV dan 35 mA. Gambar pola difraksi hasil pengujian dapat dilihat pada **Gambar 4.2**.



Gambar 4.2 Hasil pengujian XRD.pada pasir dan sampel.

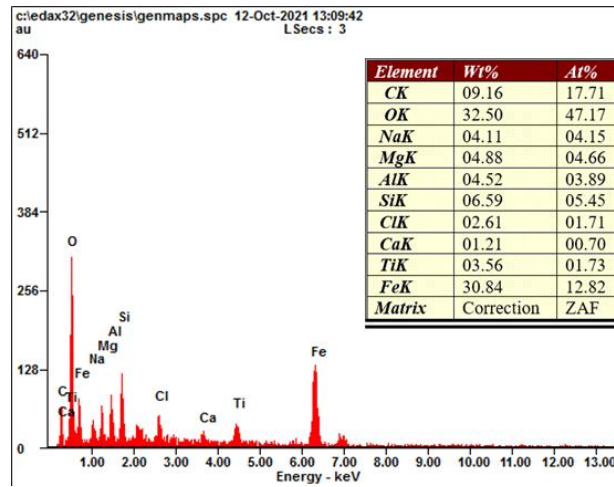
Dari pola XRD yang dihasilkan dapat dilihat bahwa semua sampel A1, A2, A3, B1, B2, dan B3 memiliki pola XRD yang sama. Semua sampel memiliki puncak yang sama yaitu pada $2\theta = 30.10^\circ, 35.68^\circ, 43.08^\circ, 57.18^\circ,$ dan 62.74° . Berdasarkan JCPDS 02-1035 kelima puncak tersebut ialah puncak dari nano- Fe_3O_4 (Bao et al., 2019; Han et al., 2018). Sedangkan pasir memiliki pola yang sedikit berbeda yaitu terdapat puncak tambahan pada $2\theta = 41.44^\circ$ yang berkorelasi dengan pola XRD senyawa $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ menurut JCPDS 89-2810 (Raneesh & Visakh, 2020; Siskawati et al., 2018). Dari pengujian XRD tersebut menunjukkan bahwa nano- Fe_3O_4 berhasil disintesis menggunakan metode kopresipitasi. Puncak $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ tidak muncul kembali pada pola XRD sampel yang menandakan seluruh oksida besi pada sampel ialah oksida dalam bentuk Fe_3O_4 . Selain itu puncak Fe_3O_4 pada 43.08° menguat setelah proses sintesis.

Penambahan dietilamin (DA) dan perbedaan temperatur *annealing* tidak memberikan pengaruh terhadap kemurnian Fe_3O_4 berdasarkan pola difraksi yang dihasilkan. Hal ini dapat dikonfirmasi dari penelitian-penelitian sebelumnya bahwa penambahan zat *surfactants* dan *soft template* tidak mempengaruhi pola XRD nano- Fe_3O_4 yang dihasilkan seperti penggunaan *n-heptane* sebagai *surfactant* menghasilkan pola difraksi sepenuhnya Fe_3O_4 (Lu et al., 2013). Penggunaan PEG dan CTAB juga memberikan hasil yang sama (Antarnusa & Suharyadi, 2020; Janani et al., 2021; Mukhopadhyay et al., 2012; Shokuhfar et al., 2008). Penambahan DA juga dikonfirmasi tidak mempengaruhi hasil XRD nano- Fe_3O_4 (Shokuhfar et al., 2008; Taufiq et al., 2018).

4.2.2 Hasil pengujian EDX

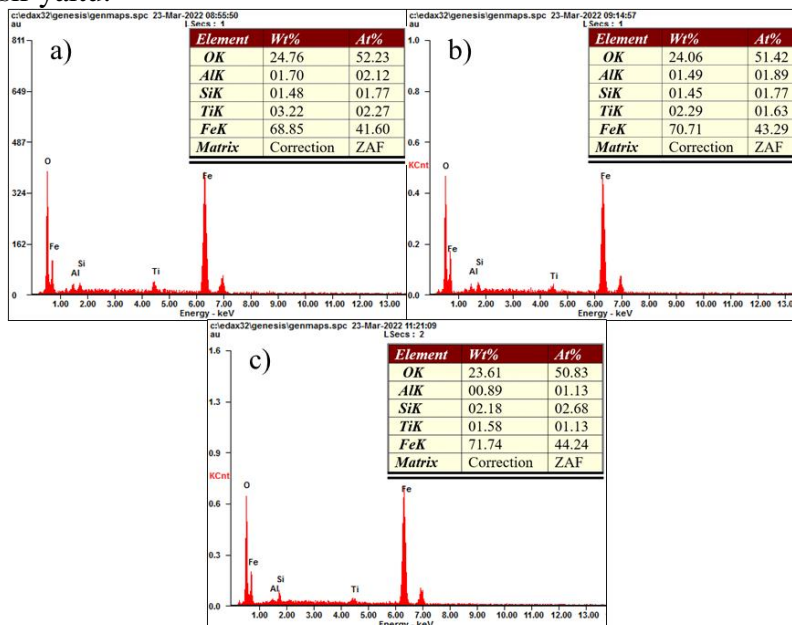
Untuk mengetahui persentase Fe_3O_4 , pengujian EDX dilakukan pada 20 kV pada pasir dan sampel. Hasil dari EDX pasir dapat dilihat pada **Gambar 4.3**. Dari hasil tersebut dapat diketahui pasir mengandung banyak mineral seperti Na, Mg, Al, Si, Ca, Ti, dan Fe dengan kandungan terbesar pada Fe. Terdapat elemen O dan Cl yang mengartikan bahwa kemungkinan

logam-logam tersebut berada pada senyawa oksida atau klorida. Berdasarkan pola XRD pasir, dapat dipastikan bahwa Fe berada pada keadaan oksidanya. Persentase Fe_3O_4 pada pasir berdasarkan perhitungan **4.1.1** mampu mencapai angka maksimum 42.62%.



Gambar 4.3 Hasil pengujian EDX pasir.

Selanjutnya hasil EDX dari sampel A ditunjukkan oleh **Gambar 4.4** Hasil pengujian EDX pada sampel A. Unsur C dan alkali seperti Na, Mg, Ca tidak ditemukan kembali pada sampel, namun pengotor elemen transisi tetap ada dengan kandungan yang lebih kecil dari sebelumnya. Untuk mengetahui kandungan Fe_3O_4 dilakukan perhitungan % oksigen pada Fe_3O_4 seperti pada pasir yaitu:



Gambar 4.4 Hasil pengujian EDX pada sampel A.

$$\% O = \frac{4}{3} \frac{Ar O}{Ar Fe} \% Fe = 0.382 \% Fe$$

A1
 $\% O = 0.382 (68.85)$
 $\% O = 26.30$

A2
 $\% O = 0.382 (70.71)$
 $\% O = 27.01$

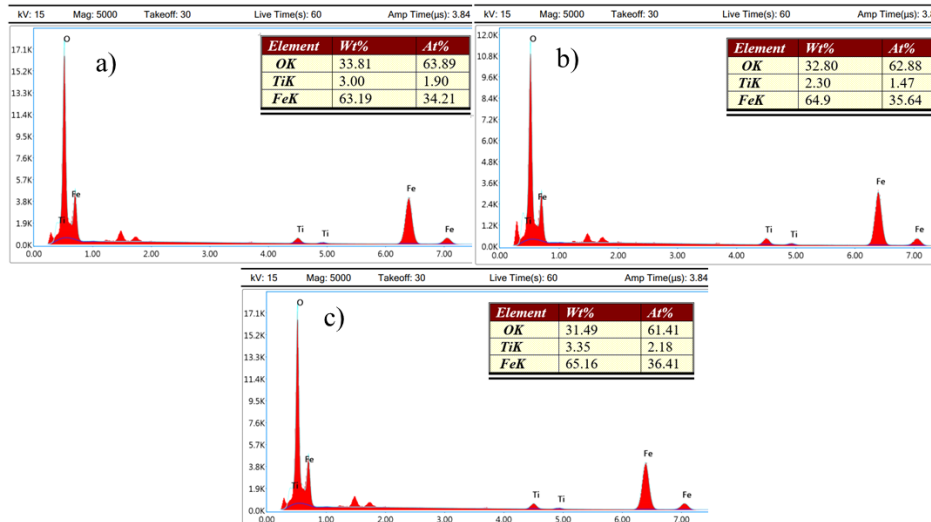
A3
 $\% O = 0.382(71.74)$
 $\% O = 27.40$

$$\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 95.15$$

$$\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 97.72$$

$$\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 99.14\%$$

Pada sampel B hasil EDX dapat dilihat pada **Gambar 4.5** Hasil pengujian EDX pada sampel B.. Pada sampel B juga terjadi pengurangan kandungan Ti, Al, dan Si serta hilangan C dan elemen alkali. Hal ini menunjukkan perbedaan temperature *annealing* tidak mempengaruhi komposisi akhir sampel. Perhitungan mengenai % Fe_3O_4 yaitu:



Gambar 4.5 Hasil pengujian EDX pada sampel B.

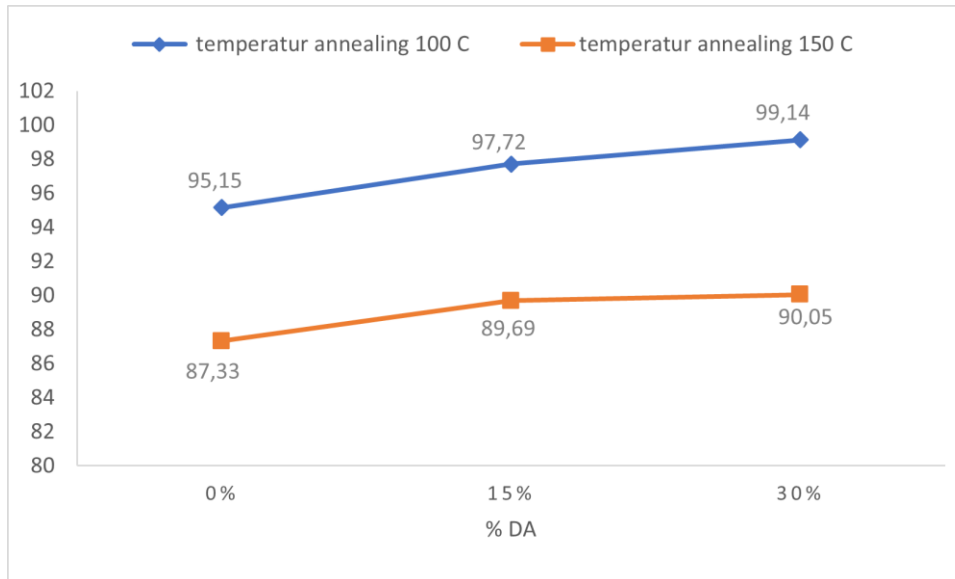
A1
 $\% \text{O} = 0.382 (63.19)$
 $\% \text{O} = 24.14$
 $\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 87.33$

A2
 $\% \text{O} = 0.382 (64.9)$
 $\% \text{O} = 24.79$
 $\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 89.69$

A3
 $\% \text{O} = 0.382(65.16)$
 $\% \text{O} = 24.89$
 $\% \text{Fe}_3\text{O}_4 = 90.05\%$

Secara umum sintesis nano- Fe_3O_4 menggunakan metode kopresipitasi berhasil meningkatkan kandungan Fe_3O_4 dari 42.62% mencapai 101.41%. Pengotor seperti oksida silika, titanium dan aluminium masih ditemukan namun pada jumlah yang kecil sehingga tidak terdeteksi pada pola difraksi. Hal ini akan dikonfirmasi selanjutnya berdasarkan spektrum *infrared* sampel. Berdasarkan grafik pada **Gambar 4.6** dapat diketahui bahwa penambahan DA dapat meningkatkan % Fe_3O_4 pada sampel. Tren ini berlaku pada perlakuan *annealing* 100 °C dan 150 °C dimana persentase magnetit meningkat seiring dengan fraksi volume DA. Hal ini sejalan dengan peran DA itu sendiri yang memiliki kemampuan untuk mencegah terjadinya oksidasi pada ion Fe (II) menjadi Fe (III) (Ahmad et al., 2009). Untuk memperoleh serbuk Fe_3O_4 perbandingan ion $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ yang optimal ialah 2:1 sesuai rumus empirisnya (Alibeigi & Vaezi, 2008; Ganapathe et al., 2020). Dengan adanya DA, ratio kation dapat dijaga pada 2:1 sehingga mampu membentuk partikel Fe_3O_4 yang lebih banyak.

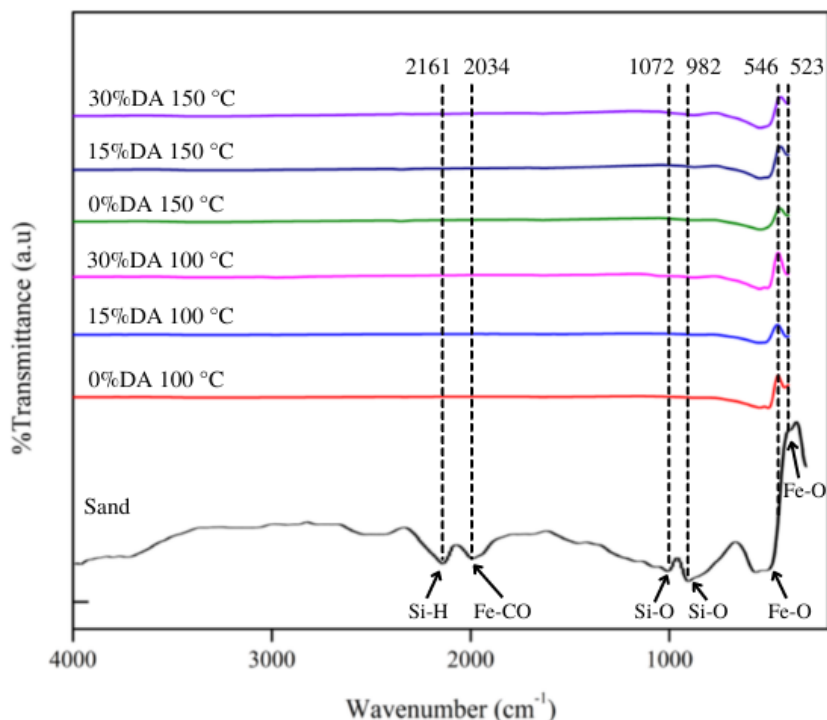
Disisi lain, perbedaan temperatur *annealing* memberikan hasil % Fe_3O_4 yang berbeda pula. Namun perbedaan komposisi ini bukan disebabkan oleh temperatur *annealing*, melainkan temperatur reaksi netralisasi (Niu & Zheng, 2014; Wei et al., 2012). Temperatur *annealing* mempengaruhi morfologi partikel dan *phase transition*. Namun pada penelitian ini tidak terjadi *phase transition* dikarenakan Fe_3O_4 baru akan berubah menjadi $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ pada temperatur 250 °C dan kemudian menjadi $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ pada temperatur 550 – 650 °C pada *annealing* selama 60 menit (Jafari et al., 2015). Pengaruh terhadap morfologi akan dibahas pada sub-bab selanjutnya.



Gambar 4.6 Grafik perbandingan % Fe_3O_4 pada sampel.

4.2.3 Hasil pengujian FTIR

Pengujian FTIR dilakukan untuk mendeteksi gugus fungsi dan ikatan pada sampel untuk mendukung hasil XRD dan EDX. Metode yang digunakan ialah metode KBr dilakukan pada rentang bilangan gelombang $4000 - 400 \text{ cm}^{-1}$. **Gambar 4.7** menunjukkan hasil pengujian FTIR.



Gambar 4.7 Hasil pengujian FTIR pada pasir dan sampel.

Dari hasil tersebut dapat diketahui pada transmisi pasir menunjukkan beberapa serapan yang berasal dari pengotor. Pita serapan pada 1072 cm^{-1} dan 982 cm^{-1} menunjukkan gugus Si-O-Si (siloksan) (Anbalagan et al., 2010; Munasir et al., 2013; Paluszkiwicz et al., 2008) dan Si-OH (Q. Wang et al., 2011). Begitu pula pada pita serapan 2161 cm^{-1} menunjukkan regangan

pada ikatan Si-H (Kaye & Westermarck, 1958). Hal ini sesuai dengan hasil EDX, elemen Si memiliki kandungan terbesar kedua setelah Fe yang menyebabkan terdapat 3 pita serapan yang ikatannya berhubungan dengan Si. Selebihnya, pita serapan yang menunjukkan kandungan Fe pada pasir memiliki 2 jenis ikatan. Yang pertama ditunjukkan oleh pita serapan pada bilangan gelombang 2034 cm^{-1} yang menunjukkan ikatan Fe-CO pada senyawa kompleks (McGlynn et al., 2009). Jenis ikatan lainnya ialah Fe-O yang dihasilkan oleh senyawa Fe_3O_4 pada pita serapan 546 cm^{-1} (Aigbe et al., 2019) dan 523 cm^{-1} (Aflahannisa & Triyono, 2020).

Semua sampel setelah sintesis menunjukkan transmisi FTIR yang sama yaitu menyisakan pita serapan pada bilangan gelombang 546 cm^{-1} dan 523 cm^{-1} . Hal tersebut menandakan semua sampel hanya mengandung senyawa yang memiliki ikatan Fe-O yaitu Fe_3O_4 sesuai dengan hasil XRD. Penambahan DA tidak memiliki pengaruh terhadap hasil akhir sampel. Gugus fungsi penyusun DA seperti N-H pada 733 cm^{-1} dan 3288 cm^{-1} , C-N pada 1143 cm^{-1} (Taufiq et al., 2018) tidak ditemukan pada hasil FTIR sampel. Begitu pula gugus fungsi H_2O (O-H) tidak ditemukan pada bilangan gelombang 3430 cm^{-1} dan 1630 cm^{-1} (Wu et al., 2008). Hal ini menandakan DA dan air seluruhnya saat proses *annealing*. Perbedaan temperature *annealing* pada $100\text{ }^\circ\text{C}$ dan $150\text{ }^\circ\text{C}$ selama 60 menit tidak memberikan pengaruh terhadap hasil akhir. Hal ini dikarenakan titik didih DA berada pada temperatur $56\text{ }^\circ\text{C}$ (Tyner & Francis, 2017) dan titik didih air berada pada temperatur $100\text{ }^\circ\text{C}$ pada keadaan STP (Sharp & Johnson, 2001).

Dari hasil pengujian XRD, EDX, dan FTIR dapat disimpulkan bahwa sintesis nano- Fe_3O_4 menggunakan metode koprisipitasi berhasil dilakukan dengan *recovery* Fe_3O_4 yang tinggi dan mengandung sedikit pengotor. Penambahan DA saat proses netralisasi dapat meningkatkan kemurnian Fe_3O_4 yang didapatkan.

4.3 Morfologi nano- Fe_3O_4 hasil sintesis

Morfologi partikel diinvestigasi menggunakan instrument SEM untuk mengetahui ukuran partikel rata-rata serta bentuk partikelnya serta diestimasi ukuran kristalnya berdasarkan pola difraksinya. Pengujian DLS digunakan untuk mengkonfirmasi ukuran partikel berdasarkan gambar hasil SEM yang didapat.

4.3.1 Estimasi nilai *crystallite size* (*d*)

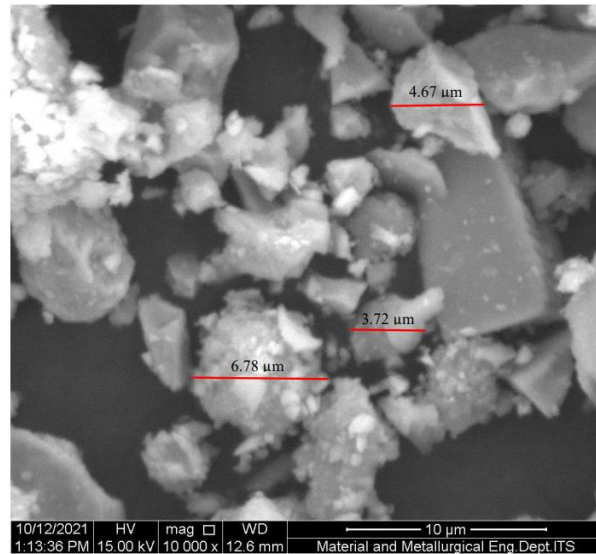
Crystallite size (*d*) atau ukuran kristal dihitung menggunakan pola XRD yang dihasilkan oleh partikel menggunakan persamaan *Scherrer*:

$$d = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta}$$

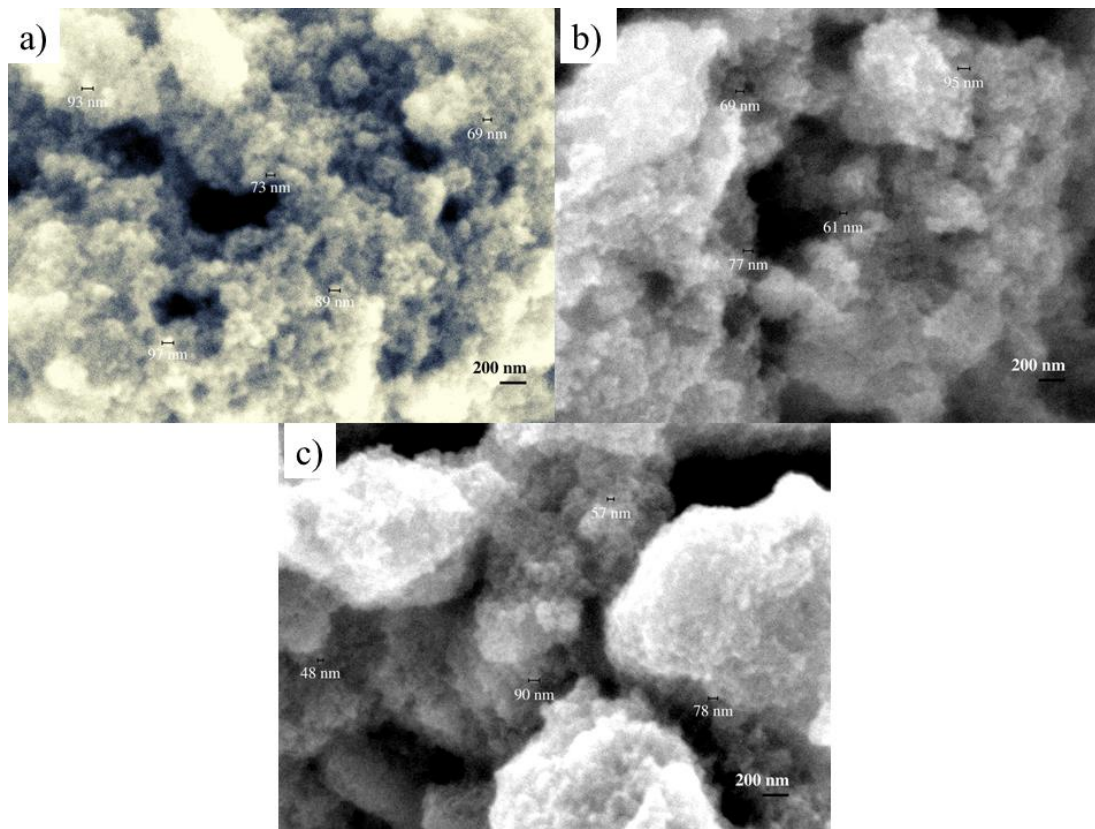
Dengan *K* ialah kostanta yang berkaitan dengan bentuk kristal. λ ialah panjang gelombang sinar-X yang digunakan pada pengujian, β ialah nilai *Full Width at Half Maximum* (FWHM) pada puncak-puncak pola difraksi. Pada perhitungan ini nilai *K* yang digunakan ialah 0.9 dikarenakan Fe_3O_4 memiliki bentuk *spherical* dengan unit kubik (Mongkolsuttirat & Buajarern, 2021; Monshi et al., 2012). Perhitungan nilai FWHM dilakukan menggunakan *software Origin*. Pengujian XRD dilakukan pada panjang gelombang 1.5406 nm . Hasil perhitungan ukuran kristal dapat dilihat pada **Tabel 4.1** yang akan didiskusikan selanjutnya bersama dengan morfologi partikelnya.

4.3.2 Hasil pengujian SEM

Pengujian SEM pada pasir dilakukan dilakukan pada 15 kV dengan perbesaran 25,000 kali. *Software ImageJ* digunakan untuk menghitung nilai ukuran partikel rata-rata sampel. Ukuran rata-rata partikel pada pasir ialah $5.05\text{ }\mu\text{m}$ seperti pada **Gambar 4.8**. Bentuk partikel pasir tidak beraturan.

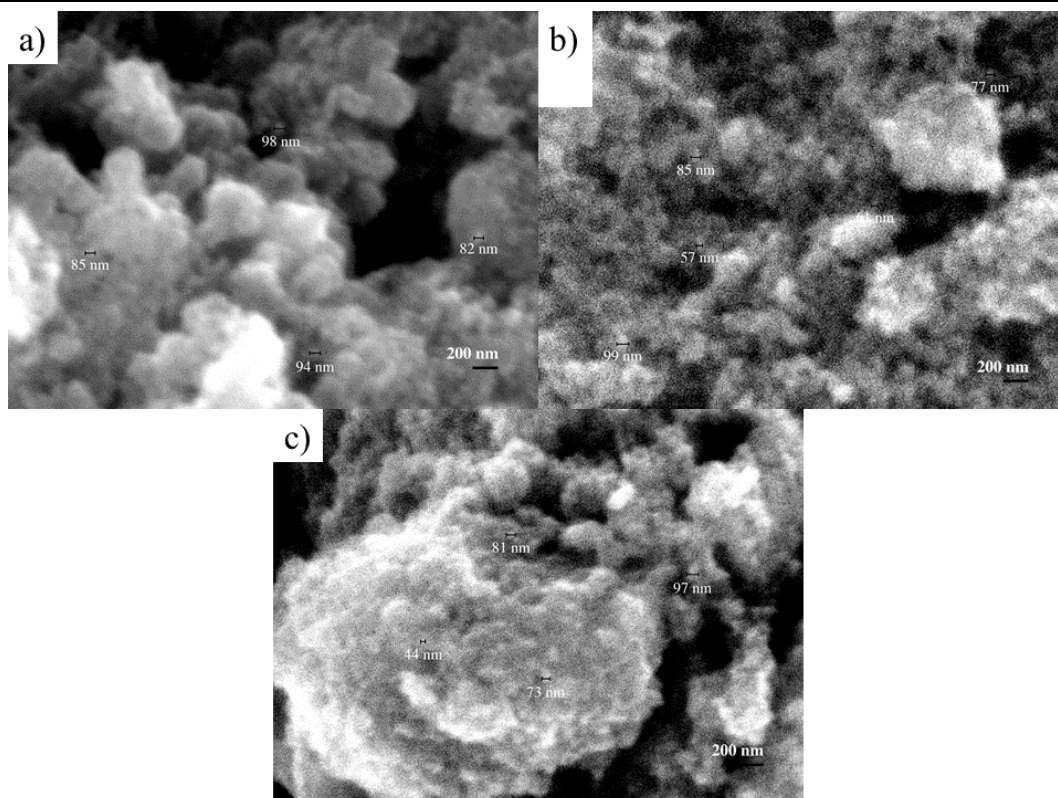


Gambar 4.8 Pengujian SEM pada pasir dengan perbesaran 25,000 kali.



Gambar 4.9 Pengujian SEM dengan perbesaran 20,000 kali pada sampel a) A1, b) A2, dan c) A3.

Namun morfologi partikel berubah setelah proses sintesis seperti yang ditampilkan pada **Gambar 4.9** dan **Gambar 4.10**. Pengambilan gambar dilakukan pada 15 kV dengan perbesaran 20,000 kali. Bentuk partikel pada sampel setelah proses sintesis ialah *sphere-like* dan memiliki ukuran rata-rata dibawah 100 nm.



Gambar 4.10 Pengujian SEM dengan perbesaran 20,000 kali pada sampel a) B1, b) B2, dan c) B3.

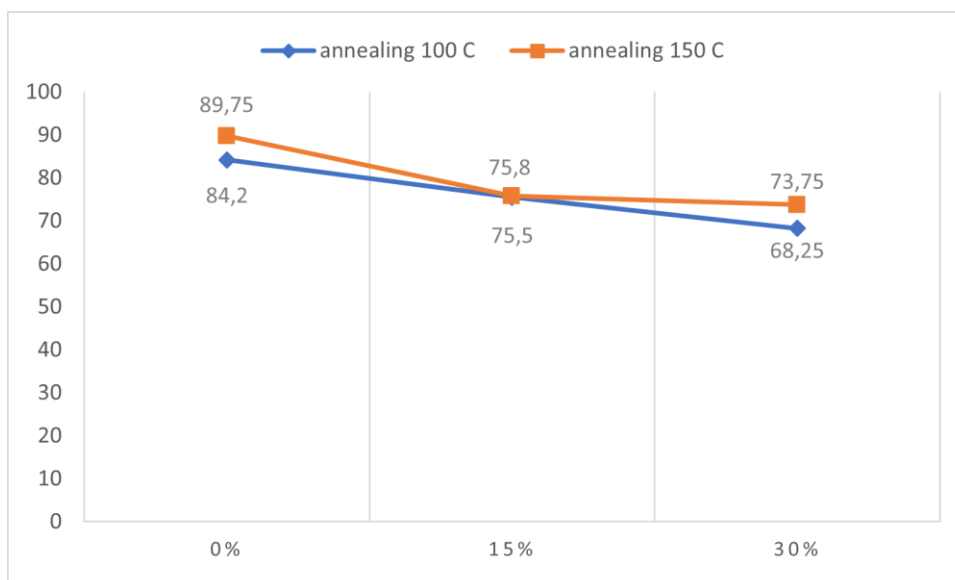
Tabel 4.1 menunjukkan perhitungan ukuran kristal dan perbandingan nilai-nilai ukuran rata-rata partikel beserta dengan standar deviasinya, serta bentuk partikel. Dari ukuran kristal yang dihasilkan dapat dilihat bahwa sintesis nano-Fe₃O₄ menggunakan metode kopresipitasi berhasil mereduksi ukuran kristal. Ukuran kristal pada pasir dihitung 54.60 nm sedangkan pada sampel berkisar dari 16.49 – 22.26 nm.

Tabel 4.1 Ukuran kristal pasir dan sampel.

Sampel	Ukuran kristal (nm)	Ukuran rata-rata partikel (nm)	Bentuk Partikel
Pasir	54.60	5056.66 ±1566.21	<i>Irregular</i>
A1	16.49	84.20±12.45	<i>Sphere-like</i>
A2	19.59	75.50±14.55	<i>Sphere-like</i>
A3	18.37	68.25±19.20	<i>Sphere-like</i>
B1	17.88	89.75±7.50	<i>Sphere-like</i>
B2	22.26	75.80±17.29	<i>Sphere-like</i>
B3	19.99	73.75±22.20	<i>Sphere-like</i>

Selain itu bentuk partikel setelah sintesis menjadi *sphere-like particles*. Seluruh sampel menunjukkan *single domain* ditinjau dari ukuran partikelnya dimana *critical diameter* dari *sphere-like* nano-Fe₃O₄ secara teori ialah 128 nm (Q. Li et al., 2017). Namun dari eksperimen ditemukan bahwa diameter *single domain* untuk nano-Fe₃O₄ ialah 80 nm (Kolhatkar et al., 2013; Krishnan, 2010; Nguyen et al., 2021). Sehingga dapat diketahui bahwa penambahan DA dapat menyebabkan *single domain* pada partikel. Hal ini dikonfirmasi dengan pengujian sifat magnetik yang akan dibahas selanjutnya.

Gambar 4.11 menunjukkan perubahan ukuran partikel rata-rata terhadap penambahan DA dan temperatur *annealing*. Penambahan DA dapat menurunkan ukuran partikel rata-rata. Hal ini sesuai dengan tujuan penambahan DA sebagai *soft template* yang mencegah terjadinya aglomerasi sebagaimana yang sudah dijelaskan pada skema **Gambar 4.1** (Ahmad et al., 2009). Penelitian lainnya juga memberikan hasil yang sama yaitu penggunaan DA mampu mereduksi ukuran partikel Fe₃O₄ (Taufiq et al., 2018). Sedangkan perbedaan temperatur *annealing* memiliki tren memperbesar ukuran partikel rata-rata seiring dengan kenaikan temperatur. Ini dikonfirmasi oleh beberapa penelitian lain bahwa dengan meningkatnya temperatur *annealing* ukuran partikel semakin meningkat pula (Bekele, Jule, & Saka, 2021; Bekele, Jule, Gungure, et al., 2021; Matveeva et al., 2015; Sunny et al., 2018). Ini dapat dijelaskan bahwa aglomerasi pada partikel adalah proses dasar yang mengarah pada pengurangan *surface free energy* dengan meningkatkan ukurannya dan mengurangi luas permukaan partikel (Gosens et al., 2010). Aglomerasi nanopartikel disebabkan oleh interaksi adhesi partikel satu sama lain yang lemah yang mengarah ke partikel berukuran mikro (Gosens et al., 2010; Mahmoudi et al., 2011). Sebaliknya, setelah terbentuk agregat nanopartikel ikatan sulit untuk diputus disebabkan oleh pembentukan ikatan kovalen atau ikatan logam (Gosens et al., 2010). DA berfungsi sebagai *coating agent* untuk menghambat terjadinya aglomerasi, namun saat proses *annealing* DA menguap sehingga partikel-partikel Fe₃O₄ yang tersisa akan membentuk aglomerat.



Gambar 4.11 Tren ukuran partikel rata-rata terhadap % DA dan temperatur.

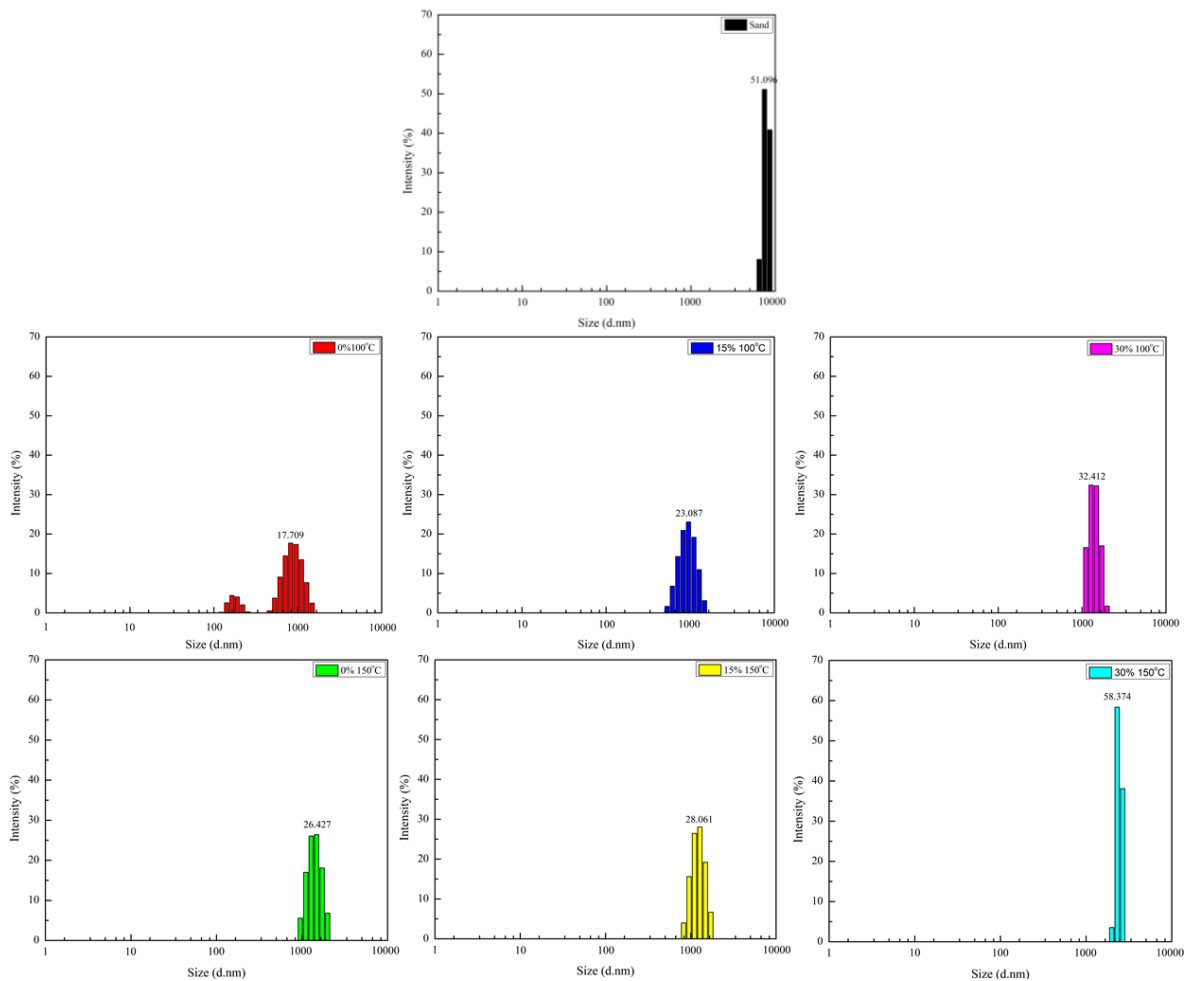
4.3.3 Hasil pengujian DLS

Untruk mengkonfirmasi bahwa partikel Fe₃O₄ teraglomerasi seperti pada gambar SEM, pengujian DLS dilakukan untuk mengetahui ukuran partikel setelah pemanasan. Pengujian DLS dilakukan menggunakan *dispersant* aquades pada temperatur 25 °C. DLS bekerja dengan mengukur *Brownian Motion* dan menghubungkannya dengan ukuran partikel. *Brownian Motion* adalah gerak acak partikel akibat bombardir oleh molekul pelarut yang mengelilinginya. Semakin besar partikel atau molekul, semakin lambat *Brownian Motion*-nya. Partikel yang lebih kecil "ditendang" lebih jauh oleh molekul pelarut dan bergerak lebih cepat. Suhu yang diketahui secara akurat diperlukan untuk DLS untuk mengetahui viskositas dengan akurat (karena viskositas cairan berhubungan dengan suhunya). Suhu yang di-*state* juga harus stabil untuk menghindari arus konveksi dalam sampel menyebabkan gerakan non-acak yang akan merusak interpretasi ukuran yang benar (Anindya, 2018).

Kecepatan *Brownian Motion* didefinisikan oleh besaran yang dikenal sebagai koefisien difusi translasi (biasanya diberi simbol, D). Hubungan D dengan ukuran partikel diekspresikan menurut persamaan *Stokes-Einstein*:

$$d(H) = \frac{kT}{3\pi\eta D}$$

Dimana $d(H)$ ialah *hydrodynamic diameter*, T ialah temperatur absolut, η ialah viskositas, dan D ialah koefisien difusi translasi (Anindya, 2018).



Gambar 4.12 Distribusi ukuran partikel berdasarkan pengujian DLS.

Gambar 4.12 menunjukkan distribusi ukuran pasir dan sampel setelah proses *annealing*. Distribusi ukuran pasir terlihat pada 6348.5 – 8634.9 nm dengan intensitas terbesar sebanyak 51.096% pada ukuran 7456.3 nm. Nilai ini sesuai dengan hasil SEM dimana ukuran partikel pasir masih dalam mikron. Sedangkan untuk sampel distribusi ukuran terlihat disekitar 1000 nm. **Tabel 4.2** menunjukkan hasil pengujian DLS, nilai-nilai tersebut ialah nilai ukuran sampel setelah teraglomerasi. Ukuran rata-rata aglomerat meningkat seiring dengan penambahan DA. Hal ini membuktikan penelitian sebelumnya bahwa DA memiliki peran penting sebagai *coating agent* pada suspensi nano-Fe₃O₄. Dengan ketiadaan DA setelah proses *annealing* partikel-partikel Fe₃O₄ yang akan menyatu akibat adanya interaksi adhesi satu sama lain (Gosens et al., 2010; Mahmoudi et al., 2011). Sementara itu sampel B yaitu sampel dengan perlakuan *annealing* pada 150 °C memiliki ukuran rata-rata aglomerat yang lebih besar dimana hal ini dikarenakan partikel-partikel pada sampel B memiliki ukuran yang lebih besar sebelum proses *annealing*.

Tabel 4.2 Hasil pengujian DLS.

Sampel	Distribusi ukuran agglomerat (μm)	Ukuran rata-rata agglomerat (nm)
Pasir	6.438 – 8.634	7856.2170
A1	0.122 – 1.483	801.5332
A2	0.531 – 1.483	944.3200
A3	0.955 – 1.990	1404.1050
B1	0.955 – 1.990	1414.6040
B2	0.824 – 1.718	1234.1070
B3	1.990 – 2.669	2432.4040

Secara keseluruhan pengujian morfologi menggunakan SEM dan DLS menunjukkan bahwa penggunaan DA mampu mereduksi ukuran partikel dan menghasilkan partikel *single domain*. Nilai magnetisasi dikonfirmasi selanjutnya dari pengujian sifat magnetik. DA memiliki peran sebagai *coating agent* untuk mencegah terjadi aglomerasi. Dengan ketiadaan DA partikel akan lebih mudah mengalami aglomerasi membentuk partikel berukuran mikron.

4.4 Hasil Pengujian BET

Surface Area Analysis (SAA) dilakukan menggunakan instrumen BET dengan *outgas time* diatas 6 jam. Gas adsorbat yang digunakan ialah gas N_2 . Pengujian dilakukan pada 11 titik untuk mendapatkan nilai *Specific Surface Area* (SSA). Hasil dari pengujian menggunakan instrument BET ialah grafik isoterm volume nitrogen teradsorpsi (V_{ad}) versus *relative pressure* (P/P_0) pada LAMPIRAN. Untuk mendapatkan nilai SSA digunakan persamaan:

$$SSA = \frac{X_m L_{av} A_m}{M_v}$$

Dimana nilai kapasitas monolayer X_m diperoleh dari *slope* dan *intercept* plot grafik *Multi Point* BET (MBET) yaitu grafik $\frac{P}{V_{ad}(P_0-P)}$ versus *relative pressure* (P/P_0). Sedangkan L_{av} ialah bilangan Avogadro yang besarnya 6.02×10^{23} molekul/mol, A_m ialah luas penampang adsorbat yang nilainya 0.162 nm^2 untuk gas N_2 dan M_v ialah volume molar gas ideal sebesar 22.4 L/mol [40]. Hasil perhitungan menggunakan formula diatas disajikan pada **Tabel 4.3**. Grafik isoterm dan MBET dapat dilihat pada

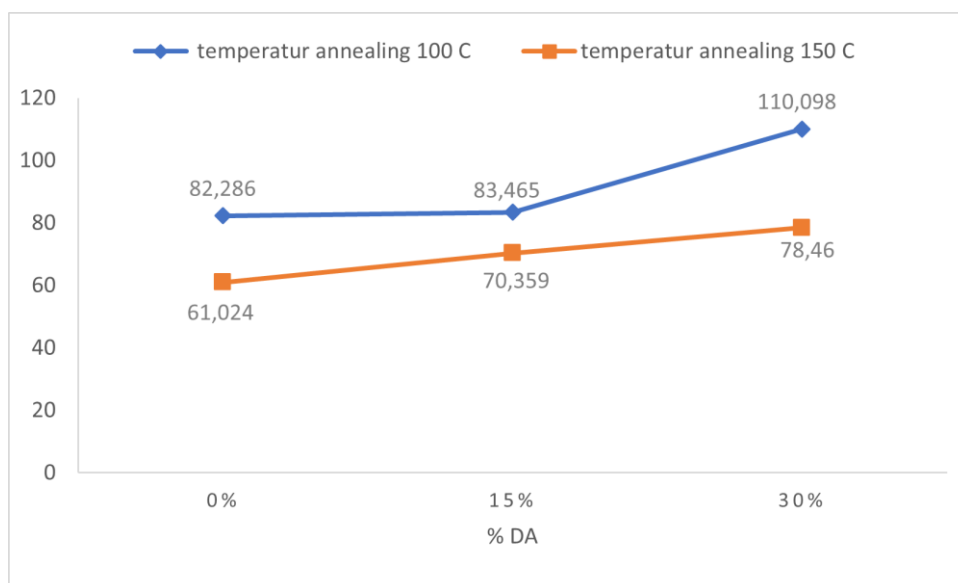
Tabel 4.3 Nilai SSA dari pasir dan sampel

Sampel	SSA (m^2/g)
Pasir	0.156
A1	82.286
A2	83.465
A3	110.098
B1	61.024
B2	70.359
B3	78.460

Berdasarkan nilai-nilai SSA yang dihasilkan, dapat diketahui bahwa sintesis nano- Fe_3O_4 menggunakan metode kopresipitasi dari pasir alam berhasil meningkatkan nilai SSA. Nilai SSA pada pasir memiliki nilai yang sangat kecil yaitu $0.156 \text{ m}^2/\text{g}$. Sedangkan SSA pada sampel mampu mencapai $110.098 \text{ m}^2/\text{g}$. Hal ini konsisten dengan morfologi partikel hasil sintesis yang didapat. Selanjutnya **Gambar 4.13** menunjukkan variasi nilai SSA yang dihasilkan akibat

perbedaan fraksi volume DA dan temperatur *annealing*. Berdasarkan grafik tersebut dapat diketahui bahwa penggunaan DA saat proses netralisasi mampu meningkatkan nilai SSA terlepas dari temperatur *annealing* yang digunakan. Nilai SSA memiliki tren meningkat pada kedua perlakuan temperatur *annealing*. Hal ini sesuai dengan morfologi ukuran partikel yang telah dibahas pada 4.3. Ukuran partikel rata-rata mengecil seiring penambahan DA dikarenakan penambahan DA menghasilkan ukuran yang lebih kecil. Ukuran partikel berbanding terbalik dengan *surface area* dimana semakin kecil ukuran partikel, nilai *surface area*-nya semakin meningkat (Dubois et al., 2017; Orts-Gil et al., 2013).

Perbedaan temperatur *annealing* juga memiliki pengaruh terhadap SSA. Perlakuan *annealing* pada 100 °C memiliki SSA yang lebih besar dibandingkan *annealing* pada 150 °C. Pemanasan memiliki pengaruh terhadap ukuran, dan morfologi partikel sehingga memiliki pengaruh terhadap nilai SSA. Ukuran partikel dan aglomerasi meningkat seiring dengan penambahan temperatur (Muthee & Dejene, 2021). Sesuai dengan pembahasan pada 4.3.2 bahwa setelah DA diupkan partikel Fe₃O₄ akan membentuk agregat untuk meminimumkan nilai *surface free energy*-nya.



Gambar 4.13 Grafik perbandingan nilai SSA pada sampel.

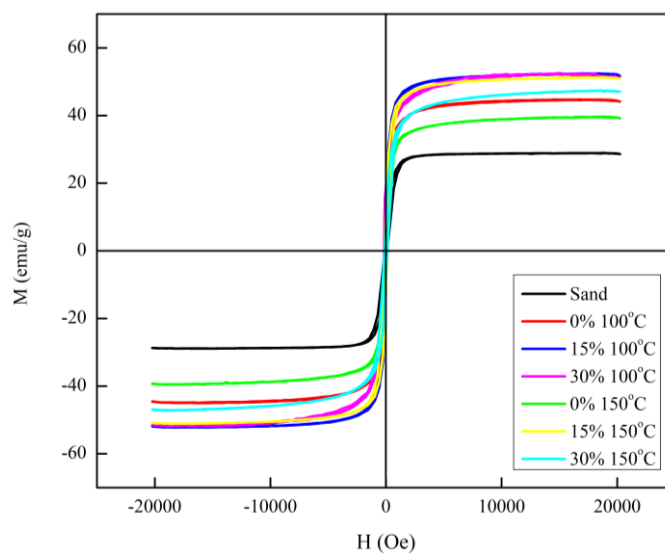
4.5 Hasil Pengujian VSM

Pengujian VSM dilakukan pada temperatur kamar dengan mengaplikasikan medan magnet eksternal dari -20,000 Oe ke 20,000 Oe. Hasil dari pengujian ini berupa kurva magnetisasi M vs medan magnet eksternal H yang ditunjukkan pada Gambar 4.14. Semua sampel menunjukkan kurva S dengan nilai *magnetic remanence* yang sangat kecil dan dapat diabaikan sehingga dapat disimpulkan bahwa keenam sampel memiliki sifat *superparamagnetic*. Perbedaan fraksi volume DA dan temperatur *annealing* memberikan perbedaan nilai magnetisasi yang berbeda seperti yang terlihat pada Tabel 4.4.

Pertama, perbedaan nilai magnetisasi saturasi yang cukup besar antara pasir dan sampel menunjukkan jika sintesis nano-Fe₃O₄ berhasil dilakukan. Nilai magnetisasi saturasi meningkat setidaknya dari 28.91 emu/g menjadi 39.96 emu/g, bahkan mencapai 52.49 emu/g. Hal ini mengkonfirmasi hasil SEM yang menunjukkan ukuran *single domain* pada partikel dimana ditandai dengan meningkatnya nilai magnetisasi saturasi. Selain itu gaya koersifitas pada pasir dan sampel dapat diabaikan melihat nilainya sangat kecil.

Nilai magnetisasi saturasi pada temperature *annealing* 100 °C meningkat sejalan dengan fraksi penambahan DA, hal ini menunjukkan DA dapat meningkatkan sifat magnetik partikel

dengan menghasilkan partikel yang lebih kecil. Fenomena ini juga dikonfirmasi oleh penelitian lain yang menunjukkan DA sebagai *soft-template* mampu mereduksi ukuran partikel dan menaikkan sifat magnetik mereka (Ahmad et al., 2009; Taufiq et al., 2018). Sedangkan pada temperatur *annealing* 150 °C penambahan DA juga menaikkan nilai magnetisasi saturasi, namun turun kembali pada 30% fraksi volume. Jika melihat rasio M_r/M_s -nya, penambahan DA 30% memiliki nilai yang lebih kecil yang mengartikan partikel lebih bersifat superparamagnetik dibandingkan fraksi volume DA 15% walaupun nilai magnetisasi saturasinya lebih kecil. Hal ini mengacu pada definisi superparamagnetik itu sendiri dimana seharusnya dengan ketiadaan medan magnet eksternal nilai magnetisasi-nya harus nol atau tidak memiliki *remanence magnetization* (M_r) (Marghussian, 2015). Nilai magnetisasi saturasi pada sampel B3 mengecil diprediksi diakibatkan oleh ukuran aglomeratnya yang besar dibanding aglomerat sampel lain berdasarkan hasil uji DLS.



Gambar 4.14 Hasil pengujian VSM.

Tabel 4.4 Hasil pengujian VSM

Sampel	Saturation Magnetization M_s (emu/g)	Remanance Magnetization M_r (emu/g)	Koersifitas (Oe)	Rasio M_r/M_s
Pasir	28.91	3.18	98.38	0.109997
A1	44.74	6.92	102.58	0.154671
A2	52.46	10.28	124.70	0.195959
A3	52.49	6.88	100.75	0.131073
B1	39.96	6.34	104.29	0.158659
B2	51.19	10.27	135.63	0.200625
B3	47.12	6.78	118.14	0.143888

Sedangkan pengaruh temperatur *annealing* pada sampel memiliki tren yang sama pada semua fraksi DA yaitu kenaikan temperatur menurunkan nilai magnetisasi saturasi. Magnetisasi saturasi (M_s) berkurang dengan peningkatan temperatur *annealing* dari 100 °C menjadi 150 °C pada konsentrasi DA 0%, 15%, DAN 30%. Peningkatan temperatur meningkatkan vibrasi termal atomik. Momen magnetik atom semakin berputar bebas sehingga peningkatan gerakan termal atom cenderung mengacak arah setiap momen yang mungkin selaras. Akibatnya nilai magnetisasi akan turun dengan menurunnya momen magnetik (Puryanti, 2020).

Secara keseluruhan pengaruh penambahan DA terhadap sifat magnetik berbanding lurus dimana DA mampu meningkatkan nilai magnetisasi saturasi. Sedangkan kenaikan temperatur *annealing* berbanding terbalik dengan nilai magnetisasi saturasi, meningkatnya temperatur pemanasan menyebabkan penurunan nilai magnetisasi saturasi.

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Kesimpulan dari penelitian ini antara lain:

1. Penambahan DA mempengaruhi ukuran partikel, luas permukaan, dan sifat magnetik partikel Fe_3O_4 yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi. Eksistensi DA menghasilkan ukuran partikel yang lebih kecil dibawah diameter *single domain*-nya, luas permukaan spesifik yang lebih besar, dan magnetisasi saturasi yang lebih tinggi.
2. Temperatur *annealing* mempengaruhi ukuran partikel, luas permukaan, dan sifat magnetik partikel Fe_3O_4 yang disintesis menggunakan metode kopresipitasi. Kenaikan temperatur *annealing* diikuti oleh ukuran partikel yang lebih besar, luas permukaan spesifik yang lebih kecil, dan magnetisasi saturasi yang lebih rendah.

5.2 Saran

Saran untuk penelitian selanjutnya mengenai sintesis Fe_3O_4 menggunakan metode kopresipitasi:

1. Mengatur tempat terjadinya reaksi pada kondisi *vacuum*.
2. Pengujian AAS diperlukan untuk mengetahui konsentrasi besi dengan eksak pada larutan kloridanya.
3. Pengujian TEM diperlukan untuk mengetahui morfologi partikel dengan gambar beresolusi tinggi.
4. Penggunaan DA ditingkatkan menjadi 100% untuk mengetahui kekonsistenan pengaruhnya terhadap morfologi partikel yang dihasilkan.

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR PUSTAKA

- Aflahannisa, A., & Triyono, D. (2020). Effect of zirconium substitution on B site bismuth ferrite ($\text{BiFe}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_3$, $x = 0.01, 0.03$ and 0.05): Structural and optical properties. *AIP Conference Proceedings*, 2242. <https://doi.org/10.1063/5.0008707>
- Aghazadeh, M., Karimzadeh, I., Ganjali, M. R., & Behzad, A. (2017). Mn^{2+} -doped Fe_3O_4 nanoparticles: a novel preparation method, structural, magnetic and electrochemical characterizations. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28(23), 18121–18129. <https://doi.org/10.1007/s10854-017-7757-x>
- Ahmad, S., Riaz, U., Kaushik, A., & Alam, J. (2009). Soft template synthesis of super paramagnetic Fe_3O_4 nanoparticles a novel technique. *Journal of Inorganic and Organometallic Polymers and Materials*, 19(3), 355–360. <https://doi.org/10.1007/s10904-009-9276-6>
- Aigbe, U. O., Onyancha, R. B., Ukhurebor, K. E., & Obodo, K. O. (2019). Removal of fluoride ions using a polypyrrole magnetic nanocomposite influenced by a rotating magnetic field. *RSC Advances*, 10(1), 595–609. <https://doi.org/10.1039/c9ra07379e>
- Alcaraz, L., Sotillo, B., Marco, J. F., Alguacil, F. J., Fernández, P., & López, F. A. (2021). Obtention and characterization of ferrous chloride $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ from water pickling liquors. *Materials*, 14(17). <https://doi.org/10.3390/ma14174840>
- Alexander, M., & Dalglish, D. G. (2006). Dynamic light scattering techniques and their applications in food science. In *Food Biophysics* (Vol. 1, Issue 1, pp. 2–13). <https://doi.org/10.1007/s11483-005-9000-1>
- Alibeigi, S., & Vaezi, M. R. (2008). Phase transformation of iron oxide nanoparticles by varying the molar ratio of $\text{Fe}^{2+}:\text{Fe}^{3+}$. *Chemical Engineering and Technology*, 31(11), 1591–1596. <https://doi.org/10.1002/ceat.200800093>
- Anbalagan, G., Prabakaran, A. R., & Gunasekaran, S. (2010). SPECTROSCOPIC CHARACTERIZATION OF INDIAN STANDARD SAND. *Journal of Applied Spectroscopy*, 77(1), 86–94. <https://doi.org/10.1007/s10812-010-9297-5>
- Anindya, A. L. (2018). Particle size analyser: beberapa penggunaan instrumen hamburan cahaya. In *Seminar Nasional Instrumentasi, Kontrol dan Otomasi (SNIKO)*.
- Antarnusa, G., & Suharyadi, E. (2020). A synthesis of polyethylene glycol (PEG)-coated magnetite Fe_3O_4 nanoparticles and their characteristics for enhancement of biosensor. *Materials Research Express*, 7(5). <https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab8bef>
- Asri, L., & Didik, L. A. (2021). SINTESIS DAN ANALISIS KANDUNGAN MINERAL DAN KARAKTERISTIK SIFAT LISTRIK NANOPARTIKEL PASIR BESI PANTAI TELINDUNG KABUPATEN LOMBOK TIMUR. *Jurnal Sains Dan Teknologi*, 10, 85–91.
- Bao, T., Dantie, M. M., Wu, K., Wei, X. L., Zhang, Y., Chen, J., Deng, C. X., Jin, J., Yu, Z. M., Wang, L., & Frost, R. L. (2019). Rectorite-supported nano- Fe_3O_4 composite materials as catalyst for P-chlorophenol degradation: Preparation, characterization, and mechanism. *Applied Clay Science*, 176, 66–77. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2019.04.020>
- Bekele, B., Jule, L., Gungure, A. S., Bekele, B., Jule, L. T., & Saka, A. (2021). The effects of annealing temperature on size, shape, structure and optical properties of synthesized zinc oxide nanoparticles by sol-gel methods. In *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures* (Vol. 16, Issue 2). <https://www.researchgate.net/publication/351687442>
- Bukit, N., Frida, E., Simamora, P., & Sinaga, T. (2015). *Synthesis Of Fe₃O₄ Nanoparticles Of Iron Sand Coprecipitation Method With Polyethylene Glycol 6000*. 7(7). www.iiste.org

- Byeon, J. H., & Park, J. H. (2016). Use of aerosol route to fabricate positively charged Au/Fe₃O₄ Janus nanoparticles as multifunctional nanoplatfoms. *Scientific Reports*, 6. <https://doi.org/10.1038/srep35104>
- Cornell, R. M., & Schwertmann, Udo. (2003). *The iron oxides : structure, properties, reactions, occurrences, and uses*. Wiley-VCH.
- Cui, Y., Zheng, X. S., Ren, B., Wang, R., Zhang, J., Xia, N. S., & Tian, Z. Q. (2011). Au@organosilica multifunctional nanoparticles for the multimodal imaging. *Chemical Science*, 2(8), 1463–1469. <https://doi.org/10.1039/c1sc00242b>
- Darezereshki, E., Bakhtiari, F., Alizadeh, M., Behrad Vakylabad, A., & Ranjbar, M. (2012). Direct thermal decomposition synthesis and characterization of hematite (α -Fe₂O₃) nanoparticles. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 15(1), 91–97. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2011.09.009>
- Dubois, I., Holgersson, S., Allard, S., Malmström, M. E., Dubois, I. E., Holgersson, S., Allard, S., & Malmström, M. E. (2017). *International Nuclear Chemistry Congress*. <https://www.researchgate.net/publication/258642360>
- Elena Gavrilă, D. (2014). *Study of composite materials with polymer matrix View project Physical Basis of Magnetism View project*. <https://www.researchgate.net/publication/317003508>
- Ellingham, S. T. D., Thompson, T. J. U., & Islam, M. (2018). Scanning Electron Microscopy–Energy-Dispersive X-Ray (SEM/EDX): A Rapid Diagnostic Tool to Aid the Identification of Burnt Bone and Contested Cremains. *Journal of Forensic Sciences*, 63(2), 504–510. <https://doi.org/10.1111/1556-4029.13541>
- Fahmiati, Nuryono, & Suyanta. (2017). Characteristics of Iron Sand Magnetic Material from Bugel Beach, Kulon Progo, Yogyakarta. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 172(1). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/172/1/012020>
- Fang, M., Ström, V., Olsson, R. T., Belova, L., & Rao, K. v. (2012). Particle size and magnetic properties dependence on growth temperature for rapid mixed co-precipitated magnetite nanoparticles. *Nanotechnology*, 23(14). <https://doi.org/10.1088/0957-4484/23/14/145601>
- Ganapathe, L. S., Mohamed, M. A., Yunus, R. M., & Berhanuddin, D. D. (2020). Magnetite (Fe₃O₄) nanoparticles in biomedical application: From synthesis to surface functionalisation. In *Magnetochemistry* (Vol. 6, Issue 4, pp. 1–35). MDPI AG. <https://doi.org/10.3390/magnetochemistry6040068>
- Gosens, I., Post, J. A., de la Fonteyne, L. J. J., Jansen, E. H. J. M., Geus, J. W., Cassee, F. R., & de Jong, W. H. (2010). Impact of agglomeration state of nano- and submicron sized gold particles on pulmonary inflammation. *Particle and Fibre Toxicology*, 7. <https://doi.org/10.1186/1743-8977-7-37>
- Gul, S., Khan, S. B., Rehman, I. U., Khan, M. A., & Khan, M. I. (2019). A Comprehensive Review of Magnetic Nanomaterials Modern Day Theranostics. In *Frontiers in Materials* (Vol. 6). Frontiers Media S.A. <https://doi.org/10.3389/fmats.2019.00179>
- Gunanto, Y. E., Izaak, M. P., Jobiliong, E., Cahyadi, L., & Adi, W. A. (2018). High purity Fe₃O₄ from Local Iron Sand Extraction. *Journal of Physics: Conference Series*, 1011(1). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1011/1/012005>
- Han, C., Zhang, X., Xu, X., Li, Q., He, Q., Meng, J., Wang, X., Liu, Z., Wu, P., & Mai, L. (2018). Porous CaFe₂O₄ as a promising lithium ion battery anode: A trade-off between high capacity and long-term stability. *Nanoscale*, 10(27), 12963–12969. <https://doi.org/10.1039/c8nr03840f>
- Hariani, P. L., Faizal, M., Ridwan, R., Marsi, M., & Setiabudidaya, D. (2013). Synthesis and Properties of Fe₃O₄ Nanoparticles by Co-precipitation Method to Removal Procion Dye.

- International Journal of Environmental Science and Development*, 336–340. <https://doi.org/10.7763/ijesd.2013.v4.366>
- Haryadi, H. (2017). ANALISIS NERACA SUMBER DAYA PASIR BESI DAN BIJIH NIKEL INDONESIA Resources Balance Analysis of Iron Sand and Nickel Ore in Indonesia. In *Jurnal Teknologi Mineral dan Batubara* (Vol. 13, Issue 2).
- Hernández-Rodríguez, J. (2019). *A Note on Prenatal Nutrition*.
- Hwang, N., & Barron, A. R. (2011). *OpenStax-CNX module: m38278 1 BET Surface Area Analysis of Nanoparticles * This work is produced by OpenStax-CNX and licensed under the Creative Commons Attribution License 3.0 †*. <http://cnx.org/content/m38278/1.1/>
- Jafari, A., Farjami Shayesteh, S., Salouti, M., & Boustani, K. (2015). Effect of annealing temperature on magnetic phase transition in Fe₃O₄ nanoparticles. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 379, 305–312. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.12.050>
- Jana, N. R., Chen, Y., & Peng, X. (2004). Size- and shape-controlled magnetic (Cr, Mn, Fe, Co, Ni) oxide nanocrystals via a simple and general approach. *Chemistry of Materials*, 16(20), 3931–3935. <https://doi.org/10.1021/cm049221k>
- Janani, B., Al-Mohaimed, A. M., Raju, L. L., al Farraj, D. A., Thomas, A. M., & Khan, S. S. (2021). Synthesis and characterizations of hybrid PEG-Fe₃O₄ nanoparticles for the efficient adsorptive removal of dye and antibacterial, and antibiofilm applications. *Journal of Environmental Health Science and Engineering*, 19(1), 389–400. <https://doi.org/10.1007/s40201-021-00612-1>
- Jeon, Y. T., Moon, J. Y., Lee, G. H., & Park, J. (2006). MAGNETIC PROPERTIES OF Ni NANOPARTICLES. In *International Journal of Modern Physics B* (Vol. 20, Issue 27). www.worldscientific.com
- Jiao, M., Zeng, J., Jing, L., Liu, C., & Gao, M. (2015). Flow synthesis of biocompatible Fe₃O₄ nanoparticles: Insight into the effects of residence time, fluid velocity, and tube reactor dimension on particle size distribution. *Chemistry of Materials*, 27(4), 1299–1305. <https://doi.org/10.1021/cm504313c>
- Kasap, S. O. (2018). *Electronic Materials & Devices*.
- Kaye, T., & Westermarck, Z. (1958). Opitz, Peake, and Nebergall. In *J. Amer. Chem. SOC* (Vol. 18).
- Kolhatkar, A. G., Jamison, A. C., Litvinov, D., Willson, R. C., & Lee, T. R. (2013). Tuning the magnetic properties of nanoparticles. In *International Journal of Molecular Sciences* (Vol. 14, Issue 8, pp. 15977–16009). <https://doi.org/10.3390/ijms140815977>
- Krishnan, K. M. (2010). Biomedical nanomagnetism: A spin through possibilities in imaging, diagnostics, and therapy. *IEEE Transactions on Magnetics*, 46(7), 2523–2558. <https://doi.org/10.1109/TMAG.2010.2046907>
- Li, Q., Kartikowati, C. W., Horie, S., Ogi, T., Iwaki, T., & Okuyama, K. (2017). Correlation between particle size/domain structure and magnetic properties of highly crystalline Fe₃O₄ nanoparticles. *Scientific Reports*, 7(1). <https://doi.org/10.1038/s41598-017-09897-5>
- Li, X.-M., Xu, G., Liu, Y., & He, T. (2011). *Magnetic Fe₃O₄ Nanoparticles: Synthesis and Application in Water Treatment* (Vol. 1). <https://doi.org/10.2174/2210681211101010014>
- Lopez-Dominguez, V., Quesada, A., Guzmán-Mínguez, J. C., Moreno, L., Lere, M., Spottorno, J., Giacomone, F., Fernández, J. F., Hernando, A., & García, M. A. (2018). A simple vibrating sample magnetometer for macroscopic samples. *Review of Scientific Instruments*, 89(3). <https://doi.org/10.1063/1.5017708>
- Lu, T., Wang, J., Yin, J., Wang, A., Wang, X., & Zhang, T. (2013). Surfactant effects on the microstructures of Fe₃O₄ nanoparticles synthesized by microemulsion method. *Colloids*

- and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 436, 675–683. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2013.08.004>
- Mahmoudi, M., Sant, S., Wang, B., Laurent, S., & Sen, T. (2011). Superparamagnetic iron oxide nanoparticles (SPIONs): Development, surface modification and applications in chemotherapy. In *Advanced Drug Delivery Reviews* (Vol. 63, Issues 1–2, pp. 24–46). <https://doi.org/10.1016/j.addr.2010.05.006>
- Marghussian, V. (2015). Magnetic Properties of Nano-Glass Ceramics. In *Nano-Glass Ceramics* (pp. 181–223). Elsevier. <https://doi.org/10.1016/b978-0-323-35386-1.00004-9>
- Matveeva, P. A., Nazarov, D. v., Osmolovskaya, O. M., Kasatkin, I. A., Smirnov, V. M., Bobrysheva, N. P., & Osmolovskii, M. G. (2015). Effect of the annealing temperature and time of the particle size of tin dioxide. *Russian Journal of General Chemistry*, 85(1), 208–210. <https://doi.org/10.1134/S1070363215010387>
- McGlynn, S. E., Mulder, D. W., Shepard, E. M., Broderick, J. B., & Peters, J. W. (2009). Hydrogenase cluster biosynthesis: Organometallic chemistry nature’s way. *Dalton Transactions*, 22, 4274–4285. <https://doi.org/10.1039/b821432h>
- Mongkolsuttirat, K., & Buajarern, J. (2021). Uncertainty evaluation of crystallite size measurements of nanoparticle using X-Ray diffraction analysis (XRD). *Journal of Physics: Conference Series*, 1719(1). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1719/1/012054>
- Monshi, A., Foughi, M. R., & Monshi, M. R. (2012). Modified Scherrer Equation to Estimate More Accurately Nano-Crystallite Size Using XRD. *World Journal of Nano Science and Engineering*, 02(03), 154–160. <https://doi.org/10.4236/wjnse.2012.23020>
- Mørup Steen and Frandsen, C. and B. F. and K. S. N. and L. K. and L. P.-A. and H. M. F. (2003). Magnetic Properties of Nanoparticles of Antiferromagnetic Materials. In B. W. and R. R. and S. H. Gülich P. and Fitzsimmons (Ed.), *Mössbauer Spectroscopy* (pp. 347–357). Springer Netherlands. https://doi.org/https://doi.org/10.1007/978-94-010-0045-1_33
- Mukhopadhyay, A., Joshi, N., Chattopadhyay, K., & De, G. (2012). A facile synthesis of PEG-coated magnetite (Fe₃O₄) nanoparticles and their prevention of the reduction of cytochrome C. *ACS Applied Materials and Interfaces*, 4(1), 142–149. <https://doi.org/10.1021/am201166m>
- Munasir, Triwikantoro, & Darminto. (2013). EKSTRAKSI DAN SINTESIS NANOSILIKA BERBASIS PASIR BANCAR DENGAN METODE BASAH. *Jurnal Penelitian Fisika Dan Aplikasinya (JPFA)*, 3.
- Muthee, D. K., & Dejene, B. F. (2021). Effect of annealing temperature on structural, optical, and photocatalytic properties of titanium dioxide nanoparticles. *Heliyon*, 7(6). <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2021.e07269>
- Nelson, N., Port, J., & Pandey, M. (2020). Use of Superparamagnetic Iron Oxide Nanoparticles (SPIONs) via Multiple Imaging Modalities and Modifications to Reduce Cytotoxicity: An Educational Review. *Journal of Nanotheranostics*, 1(1), 105–135. <https://doi.org/10.3390/jnt1010008>
- Nguyen, M. D., Tran, H. V., Xu, S., & Lee, T. R. (2021). Fe₃O₄ nanoparticles: Structures, synthesis, magnetic properties, surface functionalization, and emerging applications. In *Applied Sciences (Switzerland)* (Vol. 11, Issue 23). MDPI. <https://doi.org/10.3390/app112311301>
- Niu, J. M., & Zheng, Z. G. (2014). Effect of temperature on Fe₃O₄ magnetic nanoparticles prepared by coprecipitation method. *Advanced Materials Research*, 900, 172–176. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.900.172>

- Orts-Gil, G., Natte, K., & Österle, W. (2013). Multi-parametric reference nanomaterials for toxicology: State of the art, future challenges and potential candidates. In *RSC Advances* (Vol. 3, Issue 40, pp. 18202–18215). <https://doi.org/10.1039/c3ra42112k>
- Paluszkiwicz, C., Holtzer, M., & Bobrowski, A. (2008). FTIR analysis of bentonite in moulding sands. *Journal of Molecular Structure*, 880(1–3), 109–114. <https://doi.org/10.1016/j.molstruc.2008.01.028>
- Puryanti, D. (2020). Effect of Heating Temperature on Magnetic Properties of Fe₃O₄ Synthesized by Coprecipitation Method. *JURNAL ILMU FISIKA / UNIVERSITAS ANDALAS*, 12(1), 11–15. <https://doi.org/10.25077/jif.12.1.11-15.2020>
- Raneesh, B., & Visakh, P. M. (2020). *Metal Oxide Nanocomposites*. <https://doi.org/https://doi.org/10.1002/9781119364726>
- Schmid, G. (2004). *Nanoparticles: from theory to application*. Wiley-VCH. <https://doi.org/10.1002/9783527627561>
- Sharp, K. A., & Johnson, E. R. (2001). *Water: Structure and Properties*. www.els.net
- Shokuhfar, A., Alibeigi, S., Vaezi, M. R., & Sadrnezhaad, S. K. (2008). Synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles prepared by various surfactants and studying their characterizations. *Defect and Diffusion Forum*, 273–276, 22–27. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/ddf.273-276.22>
- Siskawati, N., Widodo, D. S., Rahmanto, W. H., & Suyati, L. (2018). *Electrosynthesis of - Fe₂O₃ in a Fe(s) IKCl(aq)11 H₂O(aq) IC(s) System*.
- Smith, B. C. (2011). *FOURIER TRANSFORM INFRARED SPECTROSCOPY Fundamentals of Second Edition*.
- Sun, S., & Zeng, H. (2002). Size-controlled synthesis of magnetite nanoparticles. *Journal of the American Chemical Society*, 124(28), 8204–8205. <https://doi.org/10.1021/ja026501x>
- Sun, S., Zeng, H., Robinson, D. B., Raoux, S., Rice, P. M., Wang, S. X., & Li, G. (2004). Monodisperse MFe₂O₄ (M = Fe, Co, Mn) Nanoparticles. *Journal of the American Chemical Society*, 126(1), 273–279. <https://doi.org/10.1021/ja0380852>
- Sunny, A., Akshay, V. R., & Vasundhara, M. (2018). Effect of annealing temperature on the size and magnetic properties of CoFe₂O₄ nanoparticle. *AIP Conference Proceedings*, 1953. <https://doi.org/10.1063/1.5032497>
- Taufiq, A., Muyasaroh, A. F., Sunaryono, S., Susanto, H., Hidayat, N., Mufti, N., Suarsini, E., Hidayat, A., Okazawa, A., Ishida, T., & Darminto, D. (2018). Preparation of superparamagnetic Fe₃O₄ nanoparticles from iron sand mediated by soft template and their performance as antibacterial agent. *Journal of Magnetism*, 23(3), 337–344. <https://doi.org/10.4283/JMAG.2018.23.3.337>
- Tyner, T., & Francis, J. (2017). *ACS Reagent Chemicals*. American Chemical Society. <https://doi.org/10.1021/acsreagents>
- Vijayakumar, R., Koltypin, Y., Felner, I., & Gedanken, A. (2000). Sonochemical synthesis and characterization of pure nanometer-sized Fe₃O₄ particles. In *Materials Science and Engineering* (Vol. 286). www.elsevier.com/locate/msea
- Wang, J., Sun, J., Sun, Q., & Chen, Q. (2003). One-step hydrothermal process to prepare highly crystalline Fe₃O₄ nanoparticles with improved magnetic properties. *Materials Research Bulletin*, 38(7), 1113–1118. [https://doi.org/10.1016/S0025-5408\(03\)00129-6](https://doi.org/10.1016/S0025-5408(03)00129-6)
- Wang, P. George., Cai, T. Bill., & Taniguchi, N. (2005). *Nitric oxide donors: for pharmaceutical and biological applications*. Wiley-VCH.
- Wang, Q., Wu, J., Wang, W., & Wang, A. (2011). Preparation, Characterization and Drug-Release Behaviors of Crosslinked Chitosan/Attapulgit Hybrid Microspheres by a Facile

- Spray-Drying Technique. *Journal of Biomaterials and Nanobiotechnology*, 02(03), 250–257. <https://doi.org/10.4236/jbnb.2011.23032>
- Waseda, Y., Matsubara, E., & Shinoda, K. (n.d.). *X-Ray Diffraction Crystallography X-Ray Diffraction Crystallography Introduction, Examples and Solved Problems*.
- Wei, Y., Han, B., Hu, X., Lin, Y., Wang, X., & Deng, X. (2012). Synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles and their magnetic properties. *Procedia Engineering*, 27, 632–637. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2011.12.498>
- Wu, W., He, Q., & Jiang, C. (2008). Magnetic iron oxide nanoparticles: Synthesis and surface functionalization strategies. *Nanoscale Research Letters*, 3(11), 397–415. <https://doi.org/10.1007/s11671-008-9174-9>
- Zhan, H., Bian, Y., Yuan, Q., Ren, B., Hursthouse, A., & Zhu, G. (2018). Preparation and potential applications of super paramagnetic Nano-Fe₃O₄. In *Processes* (Vol. 6, Issue 4). MDPI AG. <https://doi.org/10.3390/pr6040033>
- Zhang, Z. J., Chen, X. Y., Wang, B. N., & Shi, C. W. (2008). Hydrothermal synthesis and self-assembly of magnetite (Fe₃O₄) nanoparticles with the magnetic and electrochemical properties. *Journal of Crystal Growth*, 310(24), 5453–5457. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2008.08.064>
- Zhong, Y., Yu, L., Chen, Z. F., He, H., Ye, F., Cheng, G., & Zhang, Q. (2017). Microwave-Assisted Synthesis of Fe₃O₄ Nanocrystals with Predominantly Exposed Facets and Their Heterogeneous UVA/Fenton Catalytic Activity. *ACS Applied Materials and Interfaces*, 9(34), 29203–29212. <https://doi.org/10.1021/acsami.7b06925>
- Zhou, Z. H., Wang, J., Liu, X., & Chan, H. S. O. (2001). Synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles from emulsions. *Journal of Materials Chemistry*, 11(6), 1704–1709. <https://doi.org/10.1039/b100758k>
- Zhu, J., Huang, S., Ma, G., & Ming, N. (2008). SONOCHEMICAL SYNTHESIS AND MICROSTRUCTURE CHARACTERIZATION OF Fe₃O₄ AND ZnFe₂O₄ NANOCRYSTALLINES. *International Journal of Modern Physics B*, 19, 2508–2513. <https://doi.org/10.1142/S0217979205031237>

LAMPIRAN

1. Hasil uji komposisi *steelwool* menggunakan XRF

EL - 179			
Suhu : 22,1 C.			
Kelembaban : 67%.			
Berat : 0,6723 gram.			
Metode:			
1. Tanpa Standar			
2. Tanpa Filter			
3. Medium Udara			
4. Waktu 60			
5. Energi 30 KV			
Hasil:			
Compound	Conc	Unit	
P	1,6	0%	
Ca	0,77	0%	
Mn	0,86	0%	
Fe	96,18	0%	
Cu	0,16	0%	
Br	0,14	0%	
Os	0,26	0%	

2. Grafik isotherm pengujian BET

- Pasir

Isotherm

Data Reduction Parameters Data			
Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc

Isotherm Data					
Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.53472e-02	-0.0885	1.01873e-01	0.0784	2.26850e-01	0.4410
2.51085e-02	-0.0815	1.26960e-01	0.1291	2.51605e-01	0.6023
3.98312e-02	-0.0628	1.51855e-01	0.2407	2.76922e-01	0.6069
5.23796e-02	-0.0403	1.76935e-01	0.2641	3.01697e-01	0.8700
7.72924e-02	-0.0037	2.01718e-01	0.4075		

- A1

Isotherm

Data Reduction Parameters Data			
Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc

Isotherm Data					
Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.69631e-02	11.6328	9.81912e-02	17.2233	2.23279e-01	22.6044
2.55060e-02	12.6231	1.26642e-01	18.5567	2.48683e-01	23.5400
3.61676e-02	13.5522	1.48473e-01	19.5379	2.73301e-01	24.5535
4.88245e-02	14.4831	1.73333e-01	20.5251	3.01782e-01	25.9131
7.58588e-02	16.0899	1.98748e-01	21.5033		

- A2

LAPORAN TUGAS AKHIR TEKNIK MATERIAL DAN METALURGI

Isotherm

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å ²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc
------------------	--	---	---

Isotherm Data

Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.52650e-02	11.8528	9.82384e-02	17.0547	2.23516e-01	22.5416
2.53477e-02	12.9240	1.23608e-01	18.1974	2.48642e-01	23.6662
3.71603e-02	13.8358	1.48889e-01	19.2963	2.73202e-01	24.8448
4.98663e-02	14.6378	1.73672e-01	20.3422	2.97688e-01	26.1021
7.35344e-02	15.8876	1.98494e-01	21.4246		

• A3

Isotherm

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å ²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc
------------------	--	---	---

Isotherm Data

Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.57219e-02	15.8018	9.90271e-02	22.8509	2.23508e-01	30.2785
2.53363e-02	17.2449	1.23710e-01	24.5378	2.49868e-01	31.7155
3.73083e-02	18.5159	1.49820e-01	26.3739	2.73976e-01	32.9630
5.01326e-02	19.6316	1.74423e-01	27.6529	2.99260e-01	34.2678
7.37322e-02	21.3015	1.99422e-01	28.9542		

• B1

Isotherm

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å ²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc
------------------	--	---	---

Isotherm Data

Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.62355e-02	6.4584	9.81425e-02	11.4924	2.22928e-01	15.9738
2.68077e-02	7.6753	1.26915e-01	12.6100	2.47925e-01	16.8735
3.63163e-02	8.4381	1.48481e-01	13.3709	2.73974e-01	17.6769
4.87516e-02	9.2356	1.76707e-01	14.4222	2.97356e-01	18.5206
7.55540e-02	10.5759	1.99434e-01	15.1219		

• B2

Isotherm

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å ²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc
------------------	--	---	---

Isotherm Data

Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.70483e-02	10.7595	1.01426e-01	15.0027	2.26499e-01	19.4385
2.52923e-02	11.5096	1.23258e-01	15.7653	2.48134e-01	20.1929
3.61869e-02	12.2191	1.51377e-01	16.7397	2.75883e-01	21.2462
4.88385e-02	12.8765	1.73017e-01	17.4970	3.00752e-01	22.2345
7.58721e-02	14.0318	2.01097e-01	18.4754		

• B3

Isotherm

Data Reduction Parameters Data

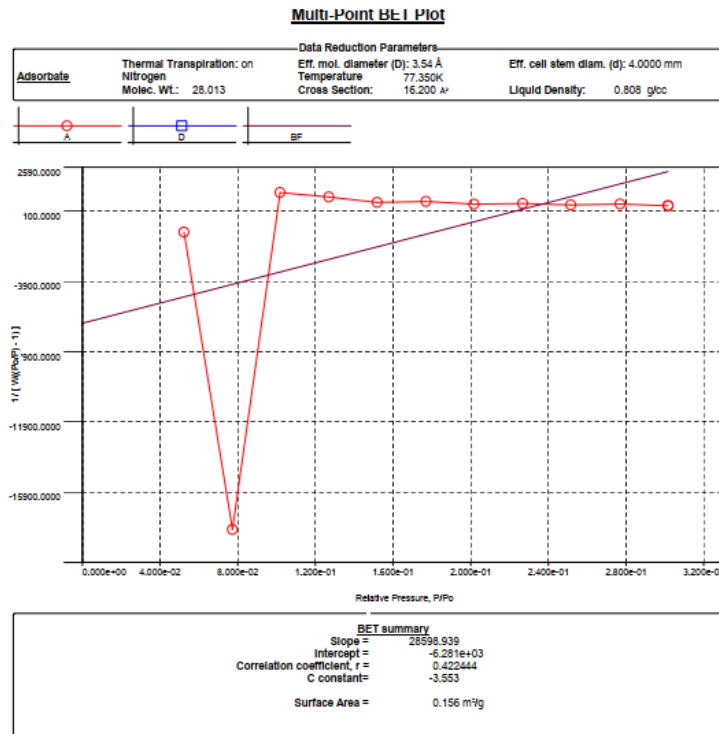
Adsorbate	Thermal Transpiration: on Nitrogen Molec. Wt.: 28.013	Eff. mol. diameter (D): 3.54 Å Temperature 77.350K Cross Section: 16.200 Å ²	Eff. cell stem diam. (d): 4.0000 mm Liquid Density: 0.808 g/cc
------------------	--	---	---

Isotherm Data

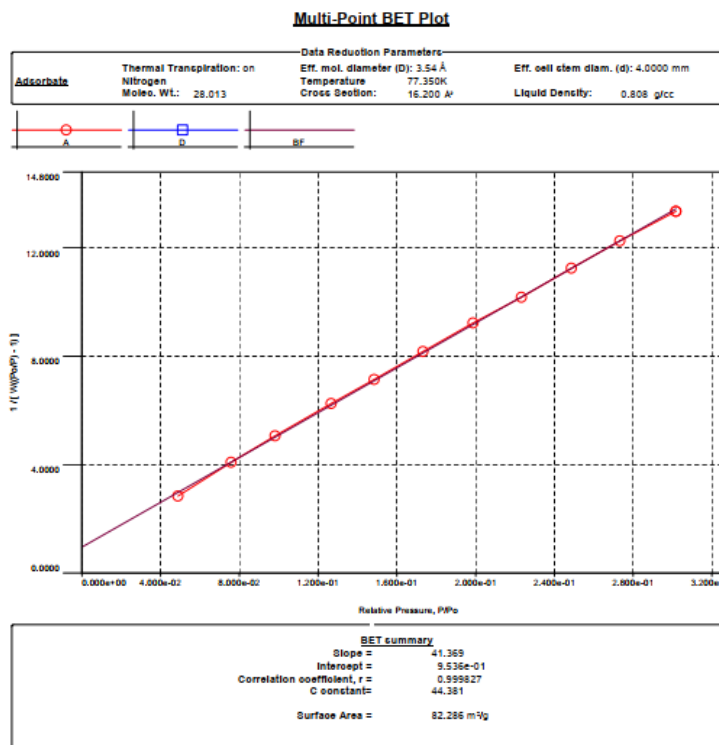
Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]	Relative Pressure	Volume @ STP [cc/g]
1.52445e-02	11.1475	9.88655e-02	16.1494	2.24638e-01	21.3407
2.57361e-02	12.1870	1.24414e-01	17.2277	2.49158e-01	22.3535
3.75517e-02	13.0521	1.49151e-01	18.2650	2.74169e-01	23.4415
5.01993e-02	13.7928	1.74704e-01	19.3341	2.99001e-01	24.4979
7.36403e-02	15.0016	1.99290e-01	20.3049		

3. Grafik MBET pengujian BET

- Pasir

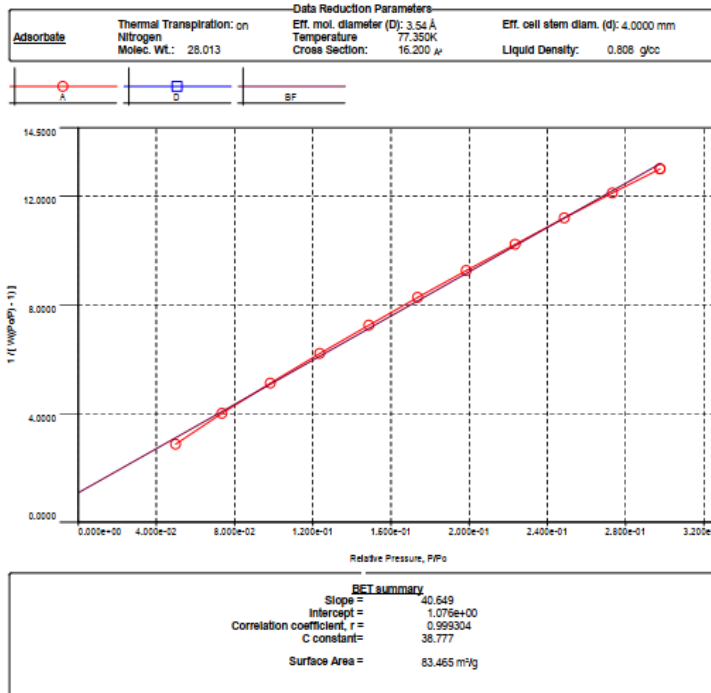


- A1



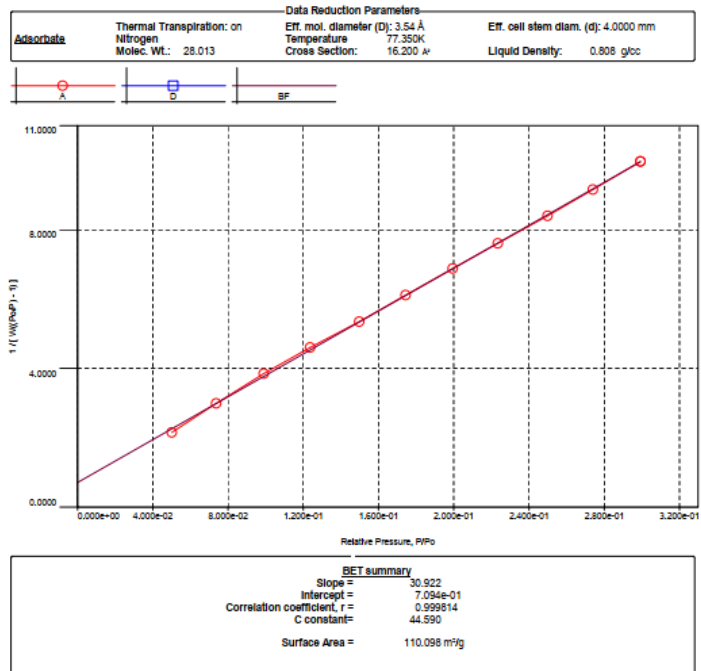
- A2

Multi-Point BET Plot



- A3

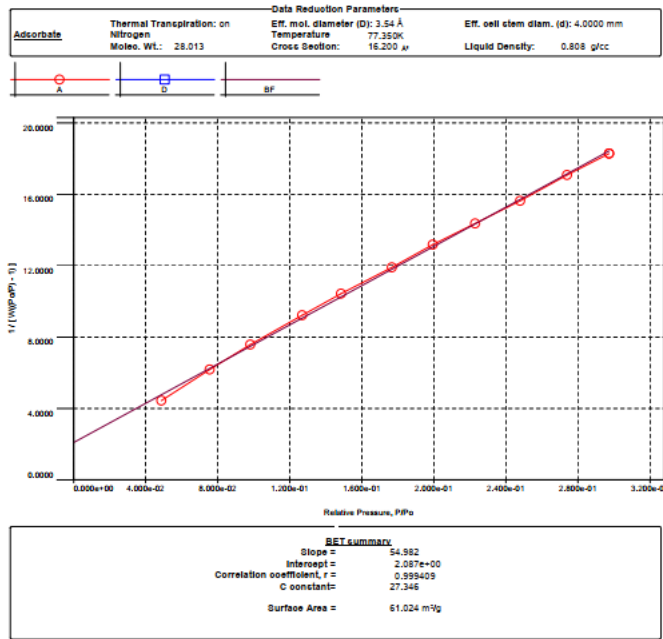
Multi-Point BET Plot



- B1

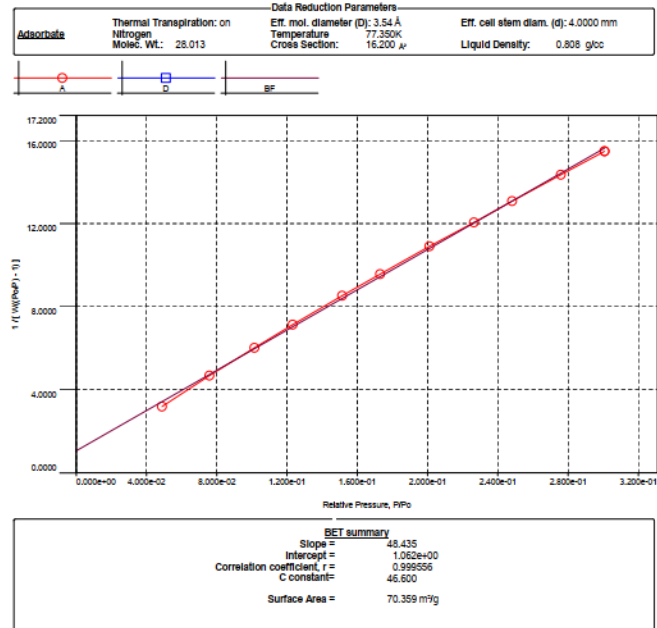
LAPORAN TUGAS AKHIR TEKNIK MATERIAL DAN METALURGI

Multi-Point BET Plot



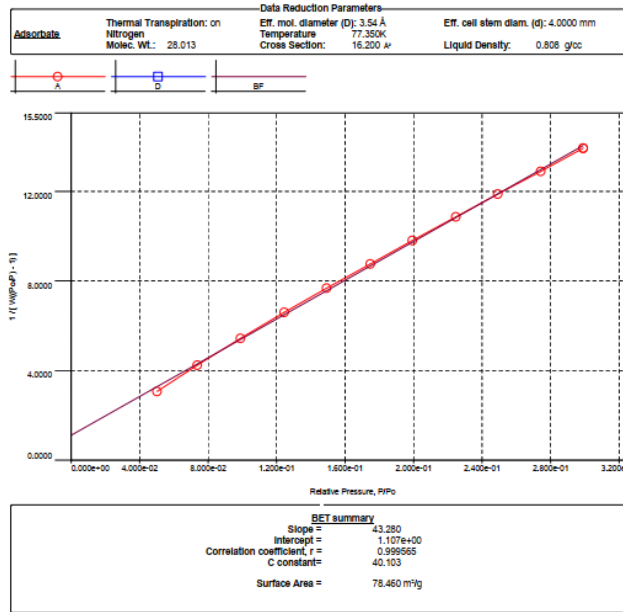
• B2

Multi-Point BET Plot



• B3

Multi-Point BET Plot



UCAPAN TERIMA KASIH

Dalam pengerjaan laporan penelitian Tugas Akhir ini, banyak bantuan, saran, maupun dukungan dari berbagai pihak. Oleh karena itu, penulis ingin menyampaikan rasa terima kasih kepada pihak-pihak yang telah membantu penulis dalam terselesaikannya laporan penelitian Tugas Akhir, diantaranya:

9. Bapak Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si., Ph.D., dan Ibu Azzah Dyah Pramata, S.T., M.T., M.Eng., Ph.D., selaku dosen pembimbing atas ilmu, sumber daya, kesabaran, dan arahan yang beliau-beliau terus berikan selama keberjalanannya Tugas Akhir ini.
10. Ibu Amaliya Rasyida S.T., M.Sc., selaku Kepala Laboratorium Material Inovasi yang mengizinkan kami untuk melakukan kegiatan tugas akhir di Labaoratorium Material Inovasi.
11. Ibu Dr. Widyastuti , S.Si., M.Si., selaku dosen wali yang telah membimbing dan memberikan banyak saran baik secara akademik maupun non akademik.
12. Bapak Suprpto, S,Si., M.Si., Ph.D., dan Ibu Winarni selaku Kepala Laboratorium Energi dan Lingkungan ITS dan operator laboratorium yang telah mengizinkan penulis untuk mempelajari instrumen BET demi kelancaran penelitian.
13. Bapak Ridha Widhianto, A.Md, selaku teknisi laboratorium Material Inovasi yang telah banyak membantu urusan teknis terkait pelaksanaan TA.
14. Seluruh dosen Departemen Teknik Material dan Metalurgi FTIRS-ITS atas ilmu yang telah diberikan kepada penulis selama proses perkuliahan.
15. Teman-teman anggota Laboratorium Material Inovasi dan Kimia Material yang telah menemani penulis dalam pengerjaan Tugas Akhir.
16. Semua pihak yang telah berkontribusi dalam proses pengerjaan Tugas Akhir yang tidak bisa penulis ucapkan satu persatu.
Semoga penelitian ini dapat terus memberikan kebermanfaatn bagi kita semua.

Surabaya, 12 Juli 2022



Jeffry Kurniawan

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

BIODATA PENULIS

Penulis lahir di Sidoarjo pada tanggal 29 Januari 2001. Penulis menempuh pendidikan formal mulai dari SD Sumber Salak 1 di tahun 2006 hingga 2012. Melanjutkan pendidikan di SMP Negeri 1 Ledokombo pada tahun 2012 hingga 2015 dan SMA Negeri Kalisat pada tahun 2015 hingga 2018. Selulus SMA, penulis melanjutkan pendidikan S-1 di Departemen Teknik Material dan Metalurgi FTIRS-ITS. Penulis memiliki kemampuan mengoperasikan instrumen-instrumen pengujian seperti TGA/DSC, BET, AFM, AAS, dan UV-Vis yang penulis dapatkan dari Laboratorium Energi dan Lingkungan ITS. Selama keberjalanan kegiatan perkuliahan penulis memiliki pencapaian akademik dan non akademik. Pencapaian akademik yang pernah diraih antara lain, Koordinator Asisten Dosen Matematika ITS 2021 – 2022, Asisten Dosen Matematika ITS 2019 – 2022, Asisten Dosen Fisika ITS 2020 – 2021, Asisten Laboratorium Korosi 2020 – 2022, peraih *Young South East ASEAN Leaders Initiative Academic Fellowship Program, University of Texas-Austin 2022, the most active participant* pada *Global Project Based Learning Mathematics 2022 ITS-SIT Japan, best student* pada *Global Project Based Learning ITS-SIT-IHI Corporation, gold medal awardee* pada *International Science 2022 and Invention Fair 2021*. Dalam pencapaian non-akademik penulis memimpin sebuah *start-up* edukasi bernama Ruang Sains sebagai CEO dan *founder* semenjak 2020. Penulis juga mengemban amanah sebagai Menteri Ekonomi Kreatif Badan Eksekutif Mahasiswa ITS 2021-2022. Selain itu penulis pernah berpartisipasi pada 4+ organisasi dan 6+ kepanitiaan. Penulis juga memiliki pengalaman 15+ *invited talks* dalam berbagai bidang seperti keilmiahan, kewirausahaan, dan *leaderships*. Untuk menyelesaikan pendidikan S1, penulis melakukan penelitian dalam bidang *Magnetic Nanoparticles*. Penulis dapat dihubungi melalui email pribadi penulis di jeffreykurniawan8@gmail.com

(Halaman ini sengaja dikosongkan)