



SKRIPSI - TK 141581

**SINTESIS PARTIKEL MAGNETITE DENGAN METODE
ELEKTROKIMIA DENGAN BANTUAN *CHELATING*
*AGENT***

Oleh:

Victoria Amanda Putri Chandra

NRP 2311100008

Agquiline Novianty Kantanegara

NRP 2311100184

Pembimbing:

Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.

NIP. 1967 02 03 1991 02 1001

Ir. Minta Yuwana, M.S

NIP. 1951 10 02 1978 03 1001

Jurusan Teknik Kimia

Fakultas Teknologi Industri

Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Surabaya 2015



FINAL PROJECT - TK 141581

**SYNTHESIS OF MAGNETITE PARTICLES USING
ELECTROCHEMICAL METHOD WITH CHELATING
AGENT**

By:

Victoria Amanda Putri Chandra

NRP 2311100008

Agquiline Novianty Kantanegara

NRP 2311100184

Advisor:

Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng.

NIP. 1967 02 03 1991 02 1001

Ir. Minta Yuwana, M.S

NIP. 1951 10 02 1978 03 1001

**Department of Chemical Engineering
Faculty of Industrial Technology
Sepuluh Nopember Institute of Technology
Surabaya 2015**

LEMBAR PENGESAHAN

"SINTESIS PARTIKEL MAGNETITE DENGAN METODE ELEKTROKIMIA DENGAN BANTUAN CHELATING AGENT"

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat Memperoleh Gelar Sarjana Teknik pada Program Studi S-1 Jurusan Teknik Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya

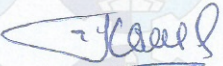
Oleh :

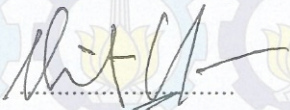
Victoria Amanda Putri Chandra
Agguiline Novianty Kantanegara

NRP. 2311 100 008
NRP. 2311 100 184

Disetujui oleh Tim Penguji Tugas Akhir :

1. Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng
(Pembimbing)
2. Ir. Minta Yuwana, M.S
(Pembimbing)
3. Prof. Dr. Ir. Achmad Roesyadi, DEA
(Penguji I)
4. Dr. Kusdianto, S.T, M.Sc.Eng
(Penguji II)
5. Ni Made Intan Putri Suari, S.T, M.T.
(Penguji III)


.....


.....


.....


.....


.....



Surabaya, 02 Juli 2015

SINTESIS PARTIKEL MAGNETITE DENGAN METODE ELEKTROKIMIA DENGAN BANTUAN *CHELATING AGENT*

Nama : **Victoria Amanda Putri Chandra**
(2311 100 008)
Agquiline Novianty Kantanegara
(2311 100 184)

Jurusan : **Teknik Kimia FTI - ITS**

Pembimbing : **Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng**
Ir. Minta Yuwana, M. S

ABSTRAK

Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia pada variabel beda potensial, pH larutan, rasio dan sumber ion Fe larutan prekursor. Proses sintesis partikel magnetite (Fe_3O_4) ini diawali dengan penambahan EDTA sebagai *chelating agent* untuk membentuk ion kompleks dalam larutan elektrolit FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ dengan konsentrasi mulai 0.25 M. Kemudian larutan dielektrolisis dengan beda potensial mulai dari 5 V. Sintesis partikel magnetite dilakukan selama 8 jam dan menggunakan elektroda karbon yang dipasang secara paralel dengan jarak di antara keduanya yaitu 2 cm. Sintesis Fe_3O_4 dilakukan pada beda potensial dan rasio larutan elektrolit yang bervariasi. Variabel yang digunakan antara lain beda potensial yang digunakan yaitu 2 hingga 10 volt; pH sekitar 3-8; konsentrasi larutan 0,25 M; dan rasio larutan sebesar 1:1 dan 2:1. Presipitat yang dihasilkan dipisahkan, dicuci dan dikeringkan untuk mendapatkan partikel Fe_3O_4 . Partikel yang telah dikeringkan selanjutnya dikarakterisasi. Karakteristik besi oksida yang diamati antara lain : struktur kristal dan komposisi penyusun sampel dengan uji XRD, diameter partikel yang diukur secara tidak langsung dengan mengukur luas permukaan spesifiknya dengan uji BET, ikatan kimia dengan metode uji FTIR.

Metode elektrokimia mampu menghasilkan partikel Fe_3O_4 meskipun masih terbentuk senyawa lain seperti Fe_2O_3 , $\text{Fe}(\text{OH})_3$ dan FeOOH . Dari hasil XRD, BET dan FTIR pada variabel yang telah ditentukan, didapatkan hasil terbaik partikel Fe_3O_4 pada kondisi konsentrasi 0.25 M pada campuran FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ dengan rasio 1:1, pH 3 dan beda potensial 5 V. Sehingga dapat disimpulkan bahwa karakteristik partikel Fe_3O_4 dipengaruhi oleh kondisi pH, beda potensial dan komposisi larutan prekursor.

Kata kunci: elektrokimia, partikel magnetite, *chelating agent*

SYNTHESIS OF MAGNETITE PARTICLES USING ELECTROCHEMICAL METHOD WITH CHELATING AGENT

Name : **Victoria Amanda Putri Chandra**
(2311 100 008)
Agquiline Novianty Kantanegara
(2311 100 184)

Department : **Chemical Engineering FTI-ITS**

Advisor : **Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng**
Ir. Minta Yuwana, M. S

ABSTRACT

The main objectives of this research are to synthesize magnetite particles using electrochemical method with chelating agent by varying voltage, pH of solution, precursor solution ratio, and Fe ion source for precursor solution. Magnetite (Fe_3O_4) synthesis was started with EDTA as chelating agent addition into $FeSO_4$ and $Fe_2(SO_4)_3$ electrolyte solution which concentration is 0.25 M to form complex ion. The solution was electrolyze with voltage starting from 5 volt. The electrolysis was conducted for 8 hours and using carbon as electrodes. The electrodes were set parallel with interelectrode spacing of 2 cm. The process was done at varying voltage (2-10 volt); electrolyte ratio (1:1 and 2:1); and with or without EDTA. The resulting precipitate was separated, washed and dried to obtain Fe_3O_4 particles. Magnetite precipitate were characterized by XRD to analyze crystalline structure and sample composition, BET to analyze surface area and FTIR to analyze chemical bonds.

The electrochemical method has successfully produce Fe_3O_4 particles although there are still many polluter as Fe_2O_3 and $FeOOH$. From the XRD, BET and FTIR results, the best condition for produce Fe_3O_4 is with mixture of Fe_2SO_4 and $FeSO_4$ (1:1); the solution concentration is 0.25 M; pH 3 and 5 volt. It could be

concluded that the Fe₃O₄ particles characteristics are be affected by pH, voltage and the composition of precursor solution.

Keyword: *electrochemical, magnetite particles, chelating agent*

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan ke hadirat Tuhan Yang Maha Esa karena atas karunia dan rahmat-Nya penulis dapat menyelesaikan Skripsi yang berjudul *Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia dengan Bantuan Chelating Agent* tepat pada waktunya.

Selama penyusunan skripsi ini, penulis mengucapkan terima kasih atas bimbingan, dorongan, serta bantuan dari pihak lain. Untuk itu penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Orang tua atas segala doa, bimbingan, dan kasih sayang yang selalu tercurah selama ini.
2. Bapak Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng selaku kepala laboratorium Elektrokimia dan Korosi dan Dosen Pembimbing atas segala bimbingan dan saran yang telah diberikan.
3. Ir. Minta Yuwana, M.S selaku Dosen Pembimbing atas segala bimbingan dan saran yang telah diberikan.
4. Bapak dan Ibu Dosen pengajar serta seluruh karyawan Jurusan Teknik Kimia ITS
5. Ibu dan Bapak mahasiswa S2 dan S3 anggota Laboratorium Elektrokimia dan Korosi atas bimbingan dan motivasi yang telah diberikan.
6. Bhisma, Sam, Chafid, Reka, Jona, Emelia, Heni, Mutia, Cintya, Arwinda, Happy, Ghoffar, Lukman dan Laras sebagai rekan – rekan laboratorium Elektrokimia dan Korosi Teknik Kimia ITS.
7. Teman–teman K51 atas bantuan, saran, kritik dan dukungannya

Penulis menyadari bahwa skripsi ini masih jauh dari sempurna dan masih banyak kekurangan. Oleh karena itu, kritik dan saran yang bersifat membangun sangat diharapkan penulis.

Surabaya, Juni 2015
Penulis

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	
LEMBAR PENGESAHAN	
ABSTRAK	i
ABSTRACT	iii
KATA PENGANTAR.....	v
DAFTAR ISI.....	vii
DAFTAR GAMBAR	ix
DAFTAR TABEL	xi
DAFTAR NOTASI	xiii
BAB I PENDAHULUAN	
I.1 Latar Belakang	1
I.2 Rumusan Masalah	3
I.3 Tujuan Penelitian	3
I.4 Manfaat Penelitian	3
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	
II.1 Magnetite	5
II.2 <i>Chelating Agent</i>	7
II.3 Elektrokimia.....	8
II.4 Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia	8
II.5 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya	10
BAB III METODOLOGI PENELITIAN	
III.1 Gambaran Besar Penelitian.....	13
III.2 Bahan	14
III.3 Alat	14
III.4 Eksperimen	15
III.5 Karakterisasi Produk.....	15
BAB IV HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN	
IV.1 Pengaruh pH Larutan.....	19
IV.2 Pengaruh Sumber Ion	21
IV.3 Pengaruh Rasio Larutan	23
IV.4 Pengaruh Beda Potensial	24
IV.5 Mekanisme Pembentukan Magnetite	29

BAB V KESIMPULAN	
V.1 Kesimpulan.....	33
DAFTAR PUSTAKA	
BIOGRAFI PENULIS	

DAFTAR TABEL

Tabel II.1 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya.....	10
Tabel IV.1 Perbandingan Hasil Sintesis Partikel.....	23
Tabel IV.2 <i>Surface Area</i> dan Diameter Partikel pada Variasi Beda Potensial.....	25

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR GAMBAR

Gambar II.1 Jenis Sel Elektrokimia.....	8
Gambar II.2 Mekanisme Pembentukan Magnetite	10
Gambar III.1 Prosedur Penelitian.....	13
Gambar III.2 Skema Peralatan untuk Sintesis.....	14
Gambar III.3 Pola XRD Standar Fe ₃ O ₄	16
Gambar IV.1 Foto Hasil Sintesis dengan Rasio Fe ³⁺ : Fe ²⁺ Sebesar 1:1 pada 5V dengan pH Bervariasi (a) pH 3 (b) pH 8	21
Gambar IV.2 Pola XRD Hasil Sintesis dengan Rasio Fe ³⁺ :Fe ²⁺ Sebesar 1:1 pada 5V dengan pH Bervariasi (a) pH 3 (b) pH 8	21
Gambar IV.3 Pola XRD Hasil Sintesis pada 5V dan pH 3 dengan Variabel Sumber Ion Fe (a) Fe ³⁺ (b) Fe ³⁺ : Fe ²⁺ Sebesar 1:1	22
Gambar IV.4 Pola XRD Hasil Sintesis pada 5V dan pH 3 dengan Rasio Fe ³⁺ : Fe ²⁺ (a) 2:1 (b) 1:1	24
Gambar IV.5 Pola XRD Hasil Sintesis pada Rasio Fe ³⁺ : Fe ²⁺ Sebesar 1:1, pH 3 dengan Berbagai Beda Potensial (a) 7V (b) 5V	26
Gambar IV.6 Foto Hasil Sintesis pada 2V, pH 3, dengan rasio Fe ³⁺ : Fe ²⁺ sebesar 1:1	27
Gambar IV.7 Hasil Analisis FTIR untuk Beda Potensial 2 Volt.....	28
Gambar IV.8 Hasil Analisis FTIR pada Beda Potensial 5V.....	29

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR NOTASI

Notasi	Keterangan	Satuan
ρ	Densitas partikel magnetite	kg/m^3
a_s	<i>Surface area</i>	m^2/g
p	Tekanan gas	mmHg
p_o	Tekanan gas jenuh	mmHg
v_m	mol gas/gram adsorben untuk membentuk monolayer	mol/g
v_o	mol gas teradsorp/gram adsorben pada tekanan p	mol/g
c	konstanta yang tergantung keadaan kimiawi permukaan	-
S_{BET}	Luas permukaan spesifik dengan metode BET	m^2/g
a_m	Cross sectional area molekular gas	\AA
N	Bilangan Avogadro	Mol^{-1}

(halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB I

PENDAHULUAN

I.1 Latar Belakang

Pada beberapa dekade terakhir, sintesis dan studi mengenai partikel besi oksida khususnya magnetite (Fe_3O_4) menarik perhatian para ilmuwan dan *engineer*. Magnetite (Fe_3O_4) merupakan salah satu bentuk oksida besi di alam selain maghemite ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$) dan hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$). Magnetite dikenal sebagai oksida besi hitam (*black iron oxide*) atau *ferrous-ferric oxide*, yang merupakan oksida logam yang paling kuat sifat magnetisnya (Teja dan Koh, 2008). Sifat superparamagnetis ini memungkinkan pemanfaatan partikel magnetite dalam berbagai aplikasi.

Dengan sifat magnetis yang dimilikinya magnetite telah dimanfaatkan secara luas di berbagai bidang antar lain sebagai perekat dan tinta magnetik, media perekam magnetik, dan katalis. Magnetite diaplikasikan sebagai katalis dari sejumlah reaksi kimia di industri seperti sintesis amoniak (proses Harber), desulfurisasi gas alam, dehidrogenasi etil benzena menjadi stirena, sintesis hidrokarbon dengan proses Fisher-Tropsch, dan oksidasi alkohol (Teja dan Koh, 2008).

Dalam bidang bioteknologi dan biomedis, material ini difungsikan sebagai agen magnetis bagi: immobilisasi protein dan enzim, penghantaran obat dan terapi hipertermia untuk tumor dan kanker; serta pada pencitraan organ-organ dalam tubuh (Berry, 2003). Selain itu, magnetite dapat pula diaplikasikan untuk pemisahan magnetis dari logam berat atau anion pada pengolahan air dan air limbah.

Luasnya aplikasi partikel magnetite dalam berbagai aspek kehidupan mendorong terus dikembangkannya berbagai metode sintesis, baik konvensional (seperti ko-presipitasi), maupun alternatif (misalnya sol-gel, *spray drying*, hidrotermal, sonokimia, dan elektrokimia) dengan tujuan mendapatkan metode sintesis yang efektif dan efisien. Namun dengan metode konvensional seperti ko-presipitasi, sulit didapatkan partikel magnetite yang

monodispers, sebab reaksi berlangsung spontan sehingga tidak mudah untuk mengontrol proses kristalisasi. Dengan metode elektrokimia, kristalinitas dan ukuran partikel yang dihasilkan dapat dikontrol dengan mengatur parameter sel elektrokimia seperti beda potensial yang dialirkan atau juga konsentrasi elektrolit. (Fajaroh dkk, 2011).

Marques dkk (2008) menggunakan metode elektrokimia untuk mensintesis partikel Fe_3O_4 . Elektroda yang digunakan berbahan karbon (grafit) dan larutan berupa campuran $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ sebagai prekursor besi dalam pelarut ethanol. Didapatkan partikel berukuran 10 nm, namun distribusi partikel tidak seragam.

Salah satu metode alternatif yang telah dikembangkan adalah metode elektrokimia yang berbasis elektro-oksidasi besi dalam air demineralisasi. Dengan metode ini partikel magnetite berhasil dideposisikan di daerah anoda, dimana anoda ini merupakan lapisan tipis besi hasil elektroplating. Namun metode ini memiliki kelemahan yaitu diperlukan waktu yang lama, karena proses berlangsung dalam dua tahap. Yang pertama adalah tahapan elektroplating, baru dilanjutkan dengan sintesis magnetite.

Besi dalam air dapat membentuk senyawa kompleks dengan *chelating agent* seperti *Ethylenediaminetetra-acetic acid* (EDTA). Kestabilan kompleks besi dan EDTA sangat dipengaruhi oleh pH. Besi akan cenderung terpresipitasi pada suasana basa. Campuran Fe^{2+} dan Fe^{3+} membentuk kompleks yang stabil dengan EDTA pada pH rendah, apabila campuran ini mengalami kenaikan nilai pH melalui penambahan ion OH^- maka diharapkan EDTA akan melepas ion Fe^{2+} dan Fe^{3+} sehingga bisa terbentuk presipitasi besi menjadi oksidanya. Penambahan ion OH^- dapat dikontrol menggunakan metode elektrokimia yaitu elektrolisis air, dimana elektrolisis air dapat diatur melalui besaran arus yang digunakan.

Oleh karena itu, dalam penelitian ini mencoba untuk mensintesis partikel magnetite secara elektrokimia dengan memanfaatkan elektrolisis air, dengan harapan didapatkan partikel

magnetite. Pada percobaan digunakan variabel besar potensial, pH larutan, sumber ion Fe serta rasio larutan prekursor besi.

I.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan uraian di atas, masalah yang kami angkat adalah

1. Bagaimana pengaruh rasio dan sumber ion Fe larutan prekursor pada hasil sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia?
2. Bagaimana pengaruh besar beda potensial pada hasil sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia?
3. Bagaimana pengaruh pH larutan pada hasil sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia?
4. Bagaimana karakteristik produk partikel magnetite yang dihasilkan?

I.3 Tujuan Penelitian

1. Mensintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia.
2. Mengamati pengaruh besar beda potensial, pH larutan, rasio dan sumber ion Fe larutan prekursor terhadap sintesis partikel magnetite.

I.4 Manfaat Penelitian

1. Mengetahui sintesis partikel magnetite melalui metode elektrokimia.
2. Memberikan kontribusi berupa data-data teknis untuk penelitian lebih lanjut.
3. Menciptakan aplikasi-aplikasi baru yang berbasis industri partikel melalui proses elektrokimia.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB II TINJAUAN PUSTAKA

II.1 Magnetite

Besi oksida merupakan senyawa yang terdiri dari besi dan oksigen. Besi oksida tersebar luas di alam dan memiliki peran penting di berbagai proses geologi dan biologi serta dalam tubuh manusia seperti hemoglobin. Terdapat beberapa jenis besi oksida seperti wustite (FeO), magnetite (Fe₃O₄), besi (II,III) oksida (Fe₄O₅), hematite (α -Fe₂O₃), β -Fe₂O₃, maghemite (γ -Fe₂O₃), dan ϵ -Fe₂O₃.

Salah satu besi oksida yang luas digunakan adalah magnetite. Magnetite (Fe₃O₄) merupakan mineral ferrimagnetik yang dalam ukuran nano, senyawa ini merupakan superparamagnetik/ferromagnetik. Senyawa ini berbentuk kristal oktahedral berwarna hitam atau keabu-abuan.

Partikel magnetite dapat diaplikasikan dalam berbagai bidang antara lain dalam bidang medis, bidang industri, dan bidang-bidang lainnya. Dalam bidang medis nanopartikel magnetite menawarkan berbagai kemungkinan yang menarik karena rasio antara luas permukaan dan volume partikel yang besar serta kemudahan untuk akses ke dalam jaringan tubuh. Pemanfaatan yang potensial dari nanopartikel magnetite adalah penggunaan gradien medan magnet yang terkendali untuk menarik partikel-partikel ke sisi yang diinginkan (Berry dan Curtis, 2003). Hal ini disebabkan nanopartikel magnetite mempunyai kisaran ukuran hingga puluhan nanometer, yang menempatkan mereka pada dimensi yang lebih kecil dibandingkan ukuran sel (10-100 μ m) atau virus (20-450 nm). Selain itu, nanopartikel magnetite bersifat magnetis yang dapat dikendalikan oleh gradien medan magnet dari luar (Pankhurst dkk, 2003).

Nanopartikel magnetite dalam bidang medis dapat diaplikasikan dalam dua kategori yaitu *in vivo* (di dalam tubuh) dan *in vitro* (di luar tubuh). Untuk aplikasi *in vivo* antara lain (Pankhurst dkk, 2003):

- a. MRI (*Magnetik Resonance Imaging*) *contrast agent*. Nanopartikel berperan sebagai *contrast agent* agar gambar yang dihasilkan lebih jelas. Nanopartikel magnetik memperbesar medan magnet yang dipancarkan oleh MRI. *Contrast agent* ini misalnya digunakan untuk membantu identifikasi tumor ganas pada limfa, hati dan otak.
- b. Hyperthermia untuk sel ganas atau tumor. Hyperthermia adalah proses pemanasan pada sel atau jaringan pada suhu 42°C selama 30 menit. Eksperimen ini dilakukan pertama kali oleh Gilchrist dkk pada tahun 1957 dimana nanopartikel magnetik $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ dengan ukuran 20–100 nm dimasukkan ke dalam suatu contoh jaringan kemudian dipanaskan. Nanopartikel di sini berfungsi untuk membuat pemanasan yang dilakukan terfokus pada jaringan tumor atau kanker.
- c. *Drug Delivery* (Pembawa Obat). Nanopartikel magnetik digunakan untuk membawa obat tertentu ke bagian tubuh atau jaringan yang membutuhkan obat tersebut sehingga lebih efektif. Tujuan pokoknya ada dua macam, yaitu untuk mengurangi jumlah sistem distribusi obat *cytotoxic* sehingga mengurangi efek samping yang ditimbulkan dan mengurangi dosis obat yang dibutuhkan sehingga lebih efisien.
- d. *Magnetic Refrigeration System*. Nanopartikel magnetik dapat digunakan sebagai salah satu bahan alternatif pendingin ruangan (*refrigeration*).
- e. Untuk memisahkan logam pada pengolahan limbah cair industri (*magnetite carrier precipitation processes for metal ion removal*). Dengan penggunaan nanopartikel magnetik ini diharapkan logam-logam berat yang terkandung dalam limbah cair dapat dihilangkan (Cabrera dkk, 2007).

II.2 Chelating Agent

Chelating agent merupakan substansi yang molekulnya dapat membentuk beberapa ikatan ke ion logam tunggal. Chelating agent merupakan ligan multidentat. Chelating agent mempunyai peranan penting dalam produksi bahan kimia lainnya.

Salah satu chelating agent yang umum digunakan adalah ethylenediaminetetra-acetic acid (EDTA). EDTA banyak digunakan karena mudah membentuk senyawa kompleks dan mudah didapatkan.

EDTA dapat membentuk empat atau enam ikatan dengan ion logam. EDTA dapat mengikat ion logam bebas untuk menghindari efek negatif seperti *scale* pada pengolahan air limbah dan kontaminasi produk makanan. Selain itu EDTA juga dapat mengontrol kondisi oksidasi ion logam dan mengatur konsentrasi ion logam. Kompleks yang terbentuk antara EDTA dan ion logam memiliki kestabilan tinggi dan kestabilannya akan terganggu seiring dengan keberadaan ion OH^- yang meningkatkan pH larutan.

EDTA memiliki kemampuan mengikat ion logam yang kuat sehingga dalam aplikasi di industri, konsentrasi yang digunakan kurang dari 1% kecuali pada *metal plating* dibutuhkan konsentrasi yang lebih tinggi karena EDTA berperan sebagai bahan aktif.

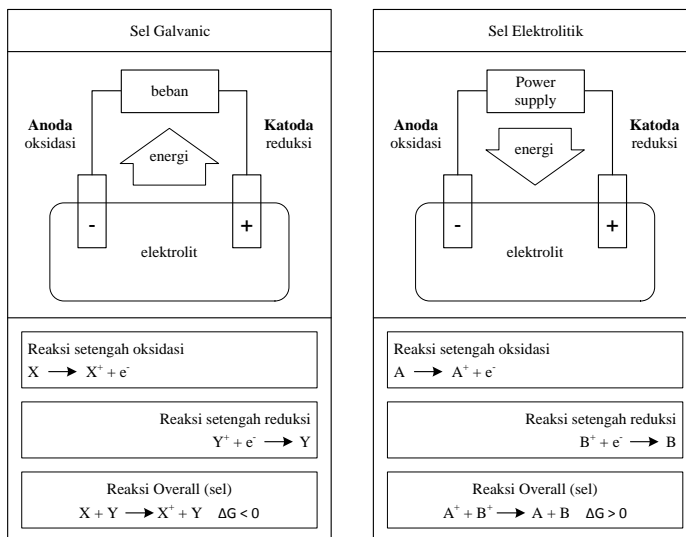
EDTA akan larut dalam air ketika pH larutan mencapai 8 sehingga diperlukan pengondisian pH larutan dengan bahan lain seperti NaOH. Kompleks Fe-EDTA akan terdekomposisi di alam apabila terkena sinar matahari dan menghasilkan *biodegradable products*.

EDTA akan membentuk kompleks dengan ion Fe^{2+} pada pH 4-6 sedangkan kompleks EDTA dan Fe^{3+} akan terbentuk pada pH 1-3. Apabila pH larutan kompleks berada diluar *range* pH pembentukan kompleks EDTA dan Fe maka kompleks tersebut akan tidak stabil sehingga ion Fe akan terlepas dari kompleks tersebut.

II.3 Elektrokimia

Elektrokimia adalah ilmu yang mempelajari akibat transfer muatan listrik dari satu fasa ke fasa lain. Elektrokimia juga bisa diartikan sebagai studi tentang hubungan antara perubahan kimia dan kerja listrik. Elektrokimia dipelajari melalui penggunaan sel elektrokimia yang merupakan sistem dengan memasukkan reaksi redoks untuk menghasilkan atau menggunakan energi listrik.

Ada dua tipe sel elektrokimia yaitu sel Galvani dan sel Elektrolisis. Sel Galvani bekerja dengan melepaskan energi bebas dari reaksi spontan untuk menghasilkan listrik, sedangkan sel elektrolisis bekerja dengan menyerap energi bebas dari sumber listrik untuk menggerakkan reaksi tak spontan



Gambar II.1 Jenis Sel Elektrokimia

II.4 Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia

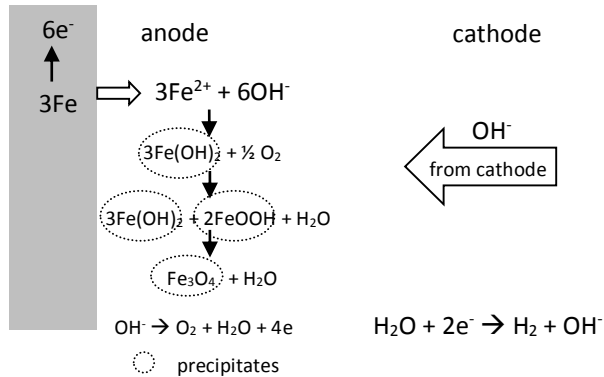
Proses sintesis partikel magnetite dengan metode elektrokimia menggunakan prinsip kerja elektrokimia yang melibatkan transfer elektron antara permukaan logam dan larutan

elektrolitnya. Cara kerjanya berdasarkan sel elektrolisis, yang menggunakan sumber listrik untuk membangkitkan reaksi kimianya.

Metode pengendapan dengan elektrokimia menggunakan dua elektroda dan larutan elektrolit. Terjadi reaksi oksidasi di anoda (elektroda positif) dan reaksi reduksi di katoda (elektroda negatif). Oksidasi sendiri dapat diartikan reaksi kehilangan elektron, sedangkan reduksi menerima elektron. Karena reaksi tersebut endapan partikel dapat menempel pada bagian katoda. Kelebihan dari metode pengendapan dengan elektrokimia ini adalah lebih efisien dibandingkan dengan metode lain. Ukuran partikel yang dihasilkan dapat dikontrol dengan mengatur rapat arus listrik yang dialirkan.

Cabrera dkk (2008) mendapatkan nanopartikel magnetite melalui proses elektro-oksidasi besi dalam larutan encer tetrametil amonium klorida (TMAC) pada 60°C. Mekanisme pembentukan magnetite terdiri dari tahap-tahap: (1) Oksidasi besi menjadi ion besi (II) yang selanjutnya teroksidasi lebih lanjut menjadi ion besi (III); (2) Kombinasi antara ion besi (III) dan OH⁻ menghasilkan Fe(OH)₃; (3) Reduksi Fe(OH)₃ oleh H⁺ di katoda memberikan Fe₃O₄.

Fajaroh dkk (2011) mengajukan mekanisme reaksi pembentukan partikel magnetite dengan elektrolit air demin. Elektroda yang berupa lempeng besi mula-mula mengalami oksidasi menjadi ion Fe²⁺. Kemudian ion Fe²⁺ bereaksi dengan ion hidroksida yang terkandung dalam air demin membentuk fero hidroksida. Selanjutnya, Fe₃O₄ terbentuk sebagai hasil reaksi dehidrasi fero hidroksida dan feri oksihidroksida, keduanya adalah senyawa yang diproduksi oleh oksidasi parsial fero hidroksida dengan O₂ terlarut.



Gambar II.2 Mekanisme Pembentukan Magnetite

Tampak dalam mekanisme di atas bahwa pembentukan FeOOH sangat berperan bagi pembentukan Fe₃O₄. Untuk itu dibutuhkan suasana basa yang ditentukan oleh konsentrasi OH⁻ di daerah anoda. Konsentrasi ion OH⁻ sebagai hasil reaksi reduksi air di katoda dapat diperbesar oleh peningkatan rapat arus. Peningkatan rapat arus pun akan memperbesar O₂ terlarut sebagai hasil oksidasi air di anoda. Dengan demikian dapat disimpulkan bahwa rapat arus merupakan parameter yang harus dikontrol pada sintesis nanopartikel Fe₃O₄ dengan metode elektrokimia.

II.5 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya

Tabel II.1 Studi Hasil Penelitian Sebelumnya

No.	Peneliti	Metode	Hasil Penelitian
1.	Marques dkk (2008)	Elektrode: C Elektrolit: Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O dalam etanol	Nanopartikel magnetite berukuran 4 – 9 nm Kontaminan hidroksida besi, jika ada air

2.	Franger dkk (2004,2007)	Elektrode besi dan platina Elektrolit: larutan alkali yang mengandung ion-ion seperti Cl^- , SO_4^{2-} , SCN^- , dan $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$	Magnetite murni berdiameter 74-88 nm
3.	Cabrera dkk (2008)	Elektrode besi Elektrolit: air + senyawa amin (surfaktan) Rapat Arus : 200.000 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$	Partikel berdiameter 20 – 30 nm
4.	Fajaroh (2011)	Elektrode besi Elektrolit : air demin Rapat arus : 205-600 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$	Partikel berdiameter 5-27 nm dengan kemurnian tinggi

(halaman ini sengaja dikosongkan)

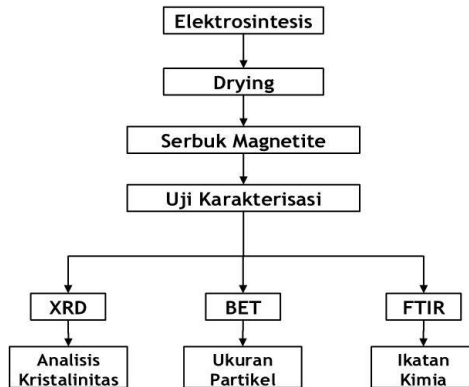
BAB III

METODOLOGI PENELITIAN

III.1. Gambaran Besar Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari sintesis magnetite. Magnetite dibuat dari larutan FeSO_4 dan larutan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ serta campuran keduanya dengan metode elektrokimia. Hal ini dilakukan dengan atau tanpa menambahkan EDTA sebagai *chelating agent* untuk membentuk ion kompleks, kemudian kondisi kesetimbangan kompleks Fe^{2+} dan Fe^{3+} tersebut dirubah dengan penambahan OH^- yang berasal dari reduksi air pada katoda. Seiring dengan peningkatan pH maka ion Fe^{2+} dan Fe^{3+} cenderung dilepaskan oleh EDTA hingga magnetite akan terpresipitasi. Presipitat yang dihasilkan dipisahkan, dicuci dan dikeringkan untuk mendapatkan partikel Fe_3O_4 . Partikel yang dihasilkan kemudian dianalisa dengan XRD, BET, dan FTIR

Beberapa faktor yang berpengaruh terhadap pembentukan presipitat adalah ion OH^- , sedangkan ukuran partikel dapat dipengaruhi oleh rapat arus dan rasio mol larutan Fe^{2+} dan Fe^{3+} . Oleh karena itu ketiga variabel tersebut yang ditinjau dalam penelitian kami.



Gambar III.1 Prosedur Penelitian

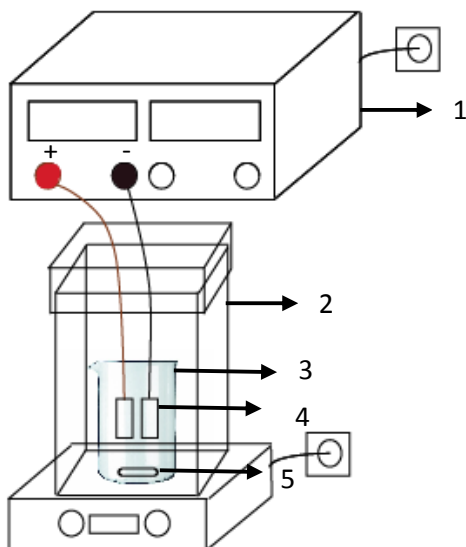
III.2 Bahan

Untuk sintesis magnetite, bahan yang digunakan adalah:

1. FeSO_4 (Merck, PA) sebagai sumber ion Fe^{2+}
2. $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ (Sigma Aldrich, PA) sebagai sumber ion Fe^{3+}
3. EDTA (Merck, PA) sebagai *chelating agent*
4. Air demin sebagai pelarut dalam elektrolisa

III.3 Alat

Susunan alat percobaan untuk sintesis Fe_3O_4 dapat dilihat pada gambar 3.1. Alat yang digunakan terdiri dari *beaker glass* 250 mL yang diletakkan di dalam bejana akrilik, elektroda, *magnetic stirrer* dan sumber arus. Bejana terbuat dari akrilik dengan ukuran 8x8x16 cm. Sedangkan elektroda yang digunakan berupa lempengan karbon dengan ukuran 2x0.3x5 cm. Dan sebagai sumber arus digunakan catu daya *Direct Current* (DC) 0-30 V (*GW Instek GPC-M Series*).



Gambar III.2 Skema Peralatan untuk Sintesis

Keterangan :

1. Catu daya DC
2. Bejana Akrilik
3. Beaker Glass 250ml
4. Elektroda (karbon)
5. *Magnetic Stirrer*

III.4 Eksperimen

Pada percobaan ini, sintesis dilakukan pada *beaker glass* 250 mL berisi larutan FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ dengan konsentrasi 0.25 M. Larutan dibuat dengan melarutkan padatan EDTA, FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ pada 150 mL air demin dengan variabel rasio Fe^{2+} dan Fe^{3+} dalam larutan sebesar 1:1 dan 2:1. Larutan juga ditambahi NaOH 4N dan 10N untuk mengkondisikan larutan untuk mencapai variabel pH antara 3-8. Elektroda yang digunakan adalah lempeng karbon. Kedua elektroda masing-masing disambungkan dengan catu daya *Direct Current* (DC) 0-30 V (*GW Instek GPC-M Series*). Elektroda dipasang secara paralel dengan jarak 2 cm diantara keduanya. Arus yang digunakan berada dalam kisaran 2-10 volt. Sintesis dilakukan selama 8 jam disertai pengadukan menggunakan *stirrer*, dan proses diamati secara periodik. Kemudian presipitat yang terbentuk di larutan dan elektroda dikeringkan menggunakan oven bersuhu 80°C selama 15 jam. Setelah diperoleh serbuk magnetite, dilakukan uji karakterisasi pada produk.

III.5 Karakterisasi Produk

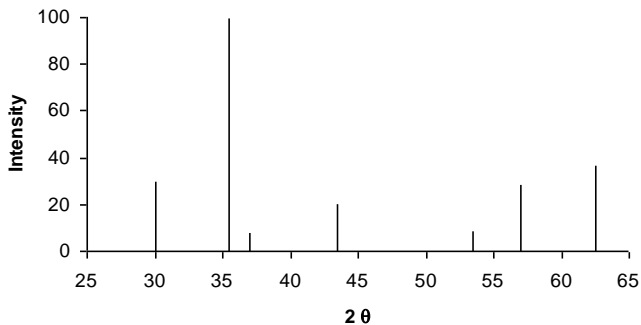
Pengujian karaktersitik produk yang dilakukan untuk mengamati properti antara lain:

1. *X-ray Diffraction* (XRD) (*X'Pert Philips*)

Karakterisasi kristal murni dilakukan dengan menggunakan analisis XRD untuk mengidentifikasi produk. Berdasarkan persamaan Bragg, jika seberkas sinar-X dijatuhkan pada sampel kristal, maka bidang kristal tersebut akan membebaskan sinar-X yang memiliki panjang

gelombang sama dengan jarak antar kisi dalam kristal tersebut. Sinar yang dibiaskan akan ditangkap oleh detektor kemudian diterjemahkan sebagai puncak difraksi. Makin banyak bidang kristal yang terdapat dalam sampel, makin kuat intensitas pembiasan yang dihasilkannya. Tiap puncak yang muncul pada pola XRD mewakili satu bidang kristal yang memiliki orientasi tertentu dalam sumbu tiga dimensi. Kemudian, pola difraksi yang berupa posisi dan intensitas relatif puncak difraksi dibandingkan dengan pola difraksi standar Fe_3O_4 (JCPDS 19-629) untuk mengetahui apakah bentuk material berupa amorf atau kristal.

Untuk partikel Fe_3O_4 yang berbentuk amorf, puncak XRD tampak landai. Sebaliknya bila puncak XRD cukup tajam, maka partikel tersebut berbentuk kristal. Dan bila pola difraksi yang terbentuk memiliki kemiripan dengan pola difraksi standar Fe_3O_4 , maka dapat dipastikan material itu berupa Fe_3O_4 .



Gambar III.3 Pola XRD standar Fe_3O_4

2. *Brunauer-Emmett-Taller* (BET) (Nova 1200, Quantachrome)

Diameter partikel rata-rata diukur secara tidak langsung dengan mengukur luas permukaan spesifik menggunakan metode BET. Dengan cara ini dengan asumsi partikel berbentuk bola pejal dan tidak berpori, diameter

partikel dapat dihitung dengan persamaan 3.1. Pengukuran dengan cara tidak langsung ini bila dibandingkan dengan SEM akan memberikan error sebesar 2.03% (Fajarok dkk, 2011).

$$\text{Diameter partikel} = \frac{6}{\rho \times a_s} \quad (3.1)$$

Dimana, ρ = densitas partikel magnetite
 $= 5127,58 \text{ kg/m}^3$
 $a_s = \text{surface area (m}^2\text{/g)}$

Pengukuran dilakukan dengan cara material dikelilingi oleh gas dan membentuk kesetimbangan pada temperatur dan tekanan uap relatif tertentu. *Surface* area dihitung berdasarkan jumlah gas yang teradsorpsi.

Perhitungan luas permukaan spesifik dari adsorpsi isotherm dengan nitrogen sebagai adsorbatnya menggunakan teori Brunauer, Emmett dan Telleet (BET) dengan persamaan:

$$\frac{p}{v_o + (p_o - p)} = \frac{1}{v_o c} + \frac{(c-1)p}{v_m c p_o} \quad (3.2)$$

Dimana :

- v_o : mol gas teradsorp/gram adsorben pada tekanan p
- v_m : mol gas/gram adsorben untuk membentuk monolayer
- p_o : tekanan gas jenuh pada temperature yang digunakan
- c : konstanta yang tergantung keadaan kimiawi permukaan

Plot antara $p/v(p-p_o)$ sebagai ordinat dan $p-p_o$ sebagai absis menghasilkan *slope* $(c-1)/v_m c$ dan *intercept* $1/v_m c$.

Dari v_m yang didapatkan, luas permukaan dapat ditentukan dengan persamaan :

$$S_{\text{BET}} = v_m a_m N \times 10^{-20} \quad (3.3)$$

Dengan S_{BET} adalah spesifik luas permukaan dalam m^2/g , a_m *cross sectional area* molekular satu molekul gas dalam angstrom kuadrat dan N adalah bilangan Avogadro. Nilai a_m untuk nitrogen biasanya untuk permukaan oksida diasumsikan 16.2.

3. *Fourier Transform Infra Red (FTIR)* (FTIR 8400s, Shimadzu)

FTIR digunakan untuk mengidentifikasi ikatan kimia yang di dalam sebuah senyawa. FTIR menghasilkan spektrum infrared yang berasal dari adsorpsi, emisi, *photoconductivity* atau Raman Scattering dari gas, liquid dan padatan. Infrared digunakan karena *peak* yang dihasilkan berhubungan dengan frekuensi vibrasi antara ikatan atom yang menyusun material tersebut. Sinar infrared dilewatkan pada sampel, sejumlah sinar infrared akan diabsorpsi oleh sampel dan sisanya akan ditransmisikan. Hasil dari spektrum ini merepresentasikan absorpsi dan transmisi molekular yang membentuk spektrum yang unik. Sehingga tidak ada dua struktur molekular yang menghasilkan spektrum infrared yang sama.

BAB IV

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini dilakukan sintesis partikel magnetite menggunakan metode elektrokimia dengan menggunakan bantuan *chelating agent* berupa EDTA (*Ethylenediaminetetraacetic acid*). Dalam penelitian ini digunakan larutan prekursor berupa FeSO_4 sebagai sumber ion Fe^{2+} dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ sebagai sumber ion Fe^{3+} dengan anoda dan katoda berupa lempengan karbon dan waktu elektrolisa selama 8 jam. Dalam penelitian ini, partikel yang dihasilkan diamati berdasarkan pengaruh sumber ion, pengaruh pH larutan, pengaruh besar rapat arus dan pengaruh EDTA. Dalam pengamatan, dilakukan uji *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui senyawa partikel yang dihasilkan, uji *Fourier Transform Infra Red* (FTIR) untuk mengetahui ikatan pada senyawa serta analisis Brunauer-Emmett-Teller (BET) untuk mengetahui diameter partikel.

IV.1 Pengaruh pH Larutan

Dalam mengamati pengaruh pH larutan terhadap partikel yang dihasilkan dilakukan percobaan dengan dua kondisi larutan, yaitu kondisi asam dan kondisi basa. Berdasarkan pengamatan secara kualitatif, yaitu bila dilihat berdasarkan kemampuan partikel untuk ditarik dengan magnet, diperoleh hasil bahwa partikel dari hasil sintesis kondisi asam pada pH 3 dapat ditarik magnet dengan sangat kuat, sedangkan untuk partikel dari hasil sintesis kondisi basa pada pH 8 tidak dapat ditarik dengan magnet.

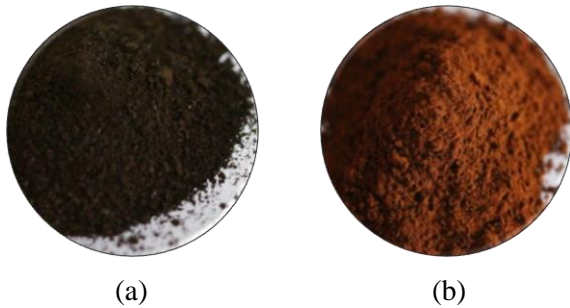
Selain itu, warna partikel yang dihasilkan memiliki perbedaan. Pada gambar IV.1 (a) dapat dilihat bahwa partikel dari sintesis pada pH 3 memiliki warna coklat kehitaman, sedangkan pada pH 8 bila dilihat pada gambar IV.1 (b) berwarna coklat kemerahan. Hasil pengamatan kualitatif yang ditunjukkan oleh hasil sintesis memiliki kecocokan dengan ciri-ciri umum partikel besi oksida yang terdapat di alam, yaitu senyawa magnetite

memiliki ciri dapat ditarik magnet dan berwarna kehitaman, sedangkan maghemite tidak dapat ditarik magnet dan berwarna coklat kemerahan.

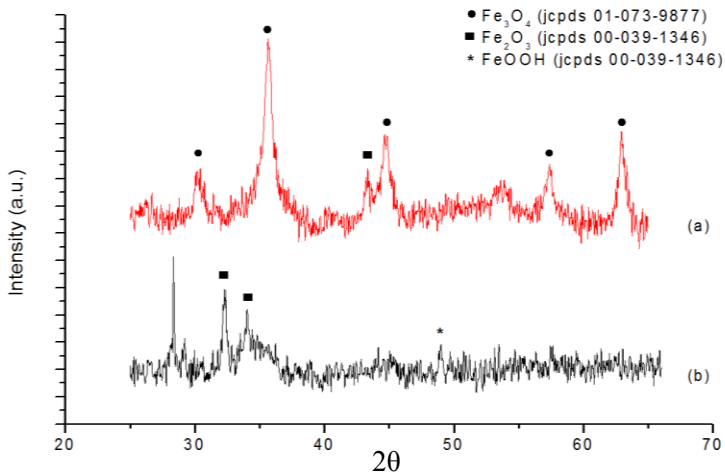
Hasil pengamatan secara kualitatif ini diperkuat dengan cara melakukan uji XRD pada partikel hasil sintesis yang dihasilkan. Analisis XRD digunakan untuk mengidentifikasi senyawa yang terkandung dalam endapan yang dihasilkan. Identifikasi dilakukan dengan cara mencocokkan pola difraksi sinar X dengan pola standar.

Gambar IV.2 menunjukkan pola XRD yang dihasilkan pada perbandingan rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ sebesar 1:1 dan beda potensial 5V pada berbagai pH. Gambar IV.2 (a) merupakan hasil analisa dari percobaan pada pH 3, puncak yang muncul menunjukkan bahwa produk yang diperoleh adalah magnetite (Fe_3O_4). Hal ini ditunjukkan oleh kesamaan puncak yang muncul pada pola difraksi hasil percobaan (ditunjukkan dengan tanda bulat) dengan pola standar Fe_3O_4 (JCPDS 01-073-9877). Dimana puncak pada standar terletak pada sudut (2θ) 30° , 35° , 44° , 57° dan 63° . Jumlah puncak yang muncul ada sebanyak 6 buah, dengan 5 puncak merupakan puncak standar Fe_3O_4 , sedangkan 1 puncak lainnya yaitu pada sudut 43° muncul karena adanya senyawa lain pada produk. Puncak yang ditunjukkan dengan tanda persegi panjang ini memiliki kecocokan puncak dengan pola standar maghemite, Fe_2O_3 (JCPDS 00-039-1346).

Analisis XRD dilakukan pula pada hasil sintesis untuk pH 8 yang ditunjukkan pada gambar IV.2 (b), pada gambar ini terdapat kecocokan dengan pola standar Fe_2O_3 yaitu pada sudut (2θ) 32° dan 34° , selain Fe_2O_3 dapat ditemukan pula kecocokan pada sudut 48° dengan pola standar senyawa FeOOH (JCPDS 00-034-1266). Melalui analisis XRD pada gambar IV.2, tampak bahwa pH larutan berpengaruh terhadap jenis senyawa partikel yang dihasilkan. Pada pH 3 dihasilkan produk berupa magnetite dengan pengotor maghemite. Sedangkan pada pH 8 dihasilkan produk maghemite dengan pengotor FeOOH .



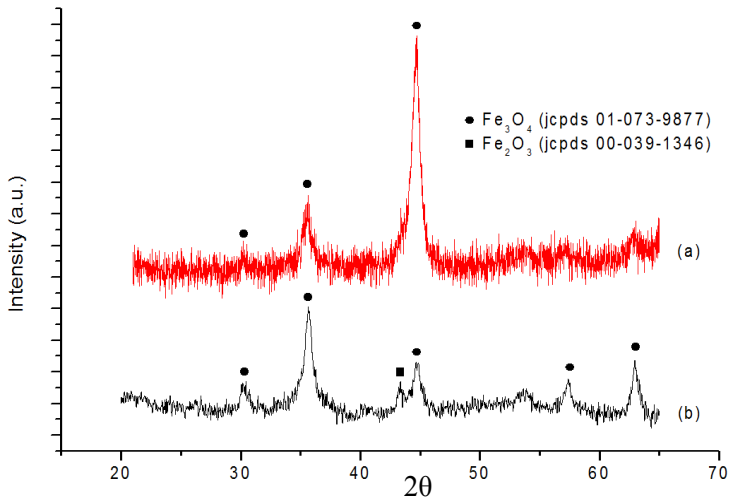
Gambar IV.1 Foto Hasil Sintesis dengan Rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ Sebesar 1:1 pada 5V dengan pH Bervariasi (a) pH 3 (b) pH 8



Gambar IV.2 Pola XRD Hasil Sintesis dengan Rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ Sebesar 1:1 pada 5V dengan pH Bervariasi (a) pH 3 (b) pH 8

IV.2 Pengaruh Sumber Ion

Pada pengamatan terhadap pembentukan partikel, selain dari pH dapat pula dilihat pengaruh sumber ion Fe nya.



Gambar IV.3 Pola XRD Hasil Sintesis pada 5V dan pH 3 dengan Variabel Sumber Ion Fe (a) Fe^{3+} (b) $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ Sebesar 1:1

Gambar IV.3 menunjukkan pola XRD yang dihasilkan pada beda potensial 5V, pH 3 dan berbagai sumber ion Fe. Pada gambar IV.3 (a) hanya digunakan sumber ion Fe^{3+} dan melalui pembacaan puncak diketahui bahwa produk yang dihasilkan merupakan senyawa magnetite. Hal ini ditunjukkan oleh kesamaan puncak pada sudut (2θ) 30° , 35° dan 44° . Sedangkan pada gambar IV.3 (b) digunakan dua buah sumber ion Fe, yaitu Fe^{3+} dan Fe^{2+} dengan rasio 1:1. Melalui kecocokan puncak pada sudut (2θ) 30° , 35° , 44° , 57° dan 63° , dapat diidentifikasi bahwa produk yang dihasilkan merupakan magnetite dengan pengotor berupa senyawa Fe_2O_3 yang memiliki puncak pada sudut 43° .

Melalui gambar IV.3 tampak bahwa sumber ion Fe berpengaruh terhadap intensitas puncak Fe_3O_4 yang muncul, keduanya menghasilkan senyawa magnetite pada suasana asam (pH 3). Pada sumber ion Fe^{3+} , ada 3 buah puncak Fe_3O_4 yang

muncul. Dan pada sumber ion Fe^{3+} dan Fe^{2+} , ada 5 buah puncak Fe_3O_4 yang muncul.

Perbandingan hasil dari variabel sumber ion Fe dapat dilihat di tabel IV.1.

Tabel IV.1 Perbandingan Hasil Sintesis Partikel

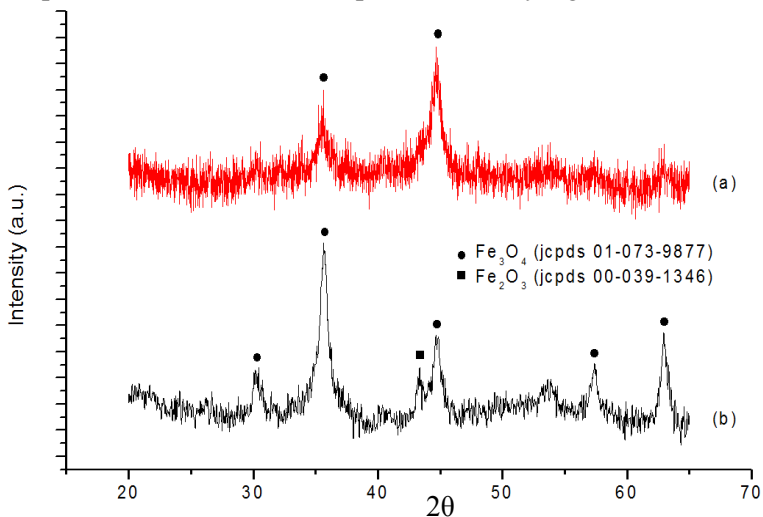
Sumber Ion Fe	Beda Potensial (V)	pH	Warna	Sifat Kemagnetan
Fe^{2+}	5	8	Coklat kemerahan	Tidak dapat ditarik magnet
Fe^{2+}	5	3	Coklat kemerahan	Tidak dapat ditarik magnet
Fe^{3+}	5	3	Coklat kehitaman	Dapat ditarik magnet dengan sangat kuat
Fe^{3+}	2	3	Kuning	Tidak dapat ditarik magnet
$\text{Fe}^{3+}, \text{Fe}^{2+}$	5	3	Coklat kehitaman	Dapat ditarik magnet dengan sangat kuat
$\text{Fe}^{3+}, \text{Fe}^{2+}$	5	8	Coklat kemerahan	Tidak dapat ditarik magnet
$\text{Fe}^{3+}, \text{Fe}^{2+}$	7	3	Coklat kemerahan	Dapat ditarik magnet dengan kuat

IV.3 Pengaruh Rasio Larutan

Dalam penelitian ini, kemudian dilakukan pula pengamatan pengaruh rasio larutan prekursor terhadap partikel yang terbentuk seperti yang tertera pada gambar IV.4. Gambar IV.4 menunjukkan pola XRD yang dihasilkan pada beda potensial 5V, pH 3 dan berbagai rasio larutan prekursor. Pada gambar IV.4 (a) digunakan rasio Fe^{3+} dan Fe^{2+} sebesar 2:1, melalui pencocokan puncak pada sudut 35° dan 45° didapatkan bahwa produk yang dihasilkan merupakan senyawa magnetite, dan pada gambar IV.4 (b) rasio Fe^{3+} dan Fe^{2+} yang digunakan adalah 1:1, dimana melalui

pembacaan puncak pada sudut 30° , 35° , 44° , 57° dan 63° diketahui produk yang dihasilkan merupakan magnetite dengan pengotor melalui pembacaan puncak pada sudut 43° merupakan senyawa Fe_2O_3 .

Melalui gambar IV.4 tampak bahwa rasio larutan prekursor berpengaruh terhadap intensitas puncak Fe_3O_4 yang muncul dan keduanya menghasilkan senyawa magnetite pada suasana asam (pH 3). Pada rasio 1:1, ada 2 buah puncak Fe_3O_4 yang muncul. Dan pada rasio 2:1, ada 5 buah puncak Fe_3O_4 yang muncul.



Gambar IV.4 Pola XRD Hasil Sintesis pada 5 V dan pH 3 dengan Rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ (a) 2:1 (b) 1:1

IV.4 Pengaruh Beda Potensial

Pada penelitian ini, dilakukan percobaan dengan variabel beda potensial 2-10 V. Pengaruh beda potensial dapat dipelajari melalui hasil analisis BET yang ditunjukkan pada tabel IV.2. Berdasarkan nilai pada tabel IV.2, dapat dilihat bahwa *surface area* dari partikel mengalami peningkatan seiring dengan penambahan beda potensial. Dimana *surface area* berbanding

terbalik dengan diameter partikel, atau dengan kata lain, semakin besar beda potensial, diameter partikel hasil sintesis yang dihasilkan semakin kecil.

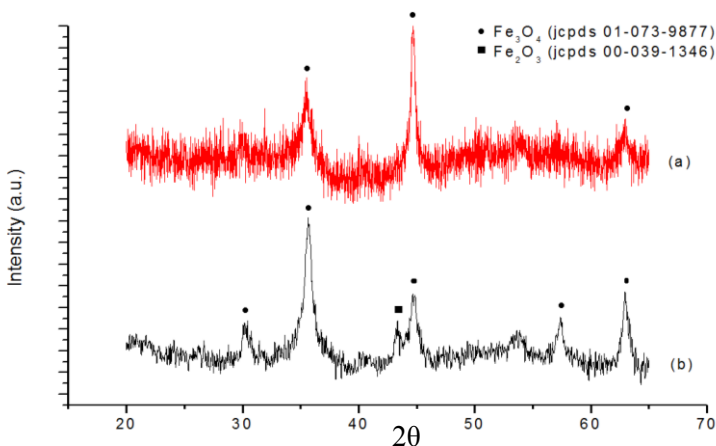
Tabel IV.2 *Surface Area* dan Diameter Partikel pada Variasi Beda Potensial

Beda Potensial (V)	<i>Surface Area</i> (m ² /g)	Diameter Partikel (nm)
5	34.644	33.78
7	53.87	21.72
10	80.063	14.62

Dari hasil pengukuran BET terlihat bahwa semakin besar beda potensial yang diberikan, diameter partikel semakin kecil. Salah satu komponen ion yang signifikan dalam pembentukan partikel magnetite adalah keberadaan ion OH⁻. Besarnya beda potensial yang diberikan akan mempercepat pelepasan elektron dimana elektron-elektron ini yang selanjutnya akan berperan pada reaksi reduksi air di katoda yang menghasilkan ion OH⁻. Banyaknya OH⁻ mempercepat pembentukan inti partikel magnetite namun mengurangi ruang partikel untuk tumbuh sehingga diameternya semakin kecil.

Selain menggunakan analisis BET, dilakukan pula analisis XRD untuk mempelajari pengaruh beda potensial terhadap partikel yang dihasilkan. Analisis XRD dapat dilihat pada gambar IV.5 yang menunjukkan pola XRD pada rasio Fe³⁺ dan Fe²⁺ sebesar 1:1, pH 3 dan berbagai beda potensial. Pada gambar IV.5 (a) digunakan beda potensial 7V, melalui pencocokan puncak didapatkan bahwa produk yang dihasilkan merupakan senyawa magnetite, pada gambar IV.5 (b) dengan beda potensial 5V dimana melalui pembacaan puncak diketahui produk yang dihasilkan merupakan magnetite dengan pengotor berupa senyawa Fe₂O₃.

Melalui gambar IV.5 tampak bahwa beda potensial berpengaruh terhadap intensitas puncak Fe_3O_4 yang muncul dan keduanya menghasilkan senyawa magnetite pada suasana asam (pH 3). Pada beda potensial 7V, ada 3 buah puncak Fe_3O_4 yang muncul. Dan pada beda potensial 5V, ada 5 buah puncak Fe_3O_4 yang muncul.



Gambar IV.5 Pola XRD Hasil Sintesis pada Rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ Sebesar 1:1, pH 3 dengan Berbagai Beda Potensial (a) 7V (b) 5V

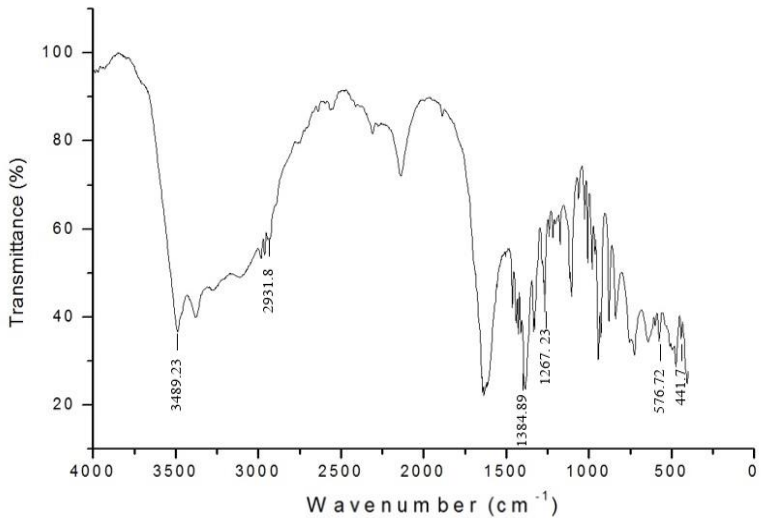
Pada penelitian ini, selain beda potensial 5V, 7V dan 10 V dilakukan pula percobaan pada beda potensial sebesar 2V untuk melihat pengaruhnya terhadap jenis partikel yang dihasilkan. Secara kualitatif, apabila dilihat berdasarkan sifat partikel endapan yang tidak dapat ditarik magnet dan bila dilihat dari gambar IV.6 yaitu partikel memiliki warna kuning, diduga bahwa partikel yang dihasilkan adalah goethite.

Dugaan ini diperkuat menggunakan uji FTIR (FTIR 8400s, Shimadzu) yang dapat menunjukkan vibrasi ikatan kimia yang terdapat pada senyawa. Gambar IV.7 menunjukkan hasil analisa FTIR dari percobaan dengan variabel beda potensial 2 volt, rasio larutan FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 1:1 dan suasana asam yaitu pada pH

3. Pada gambar IV.7 dapat dilihat vibrasi dari gugus Fe-O, yaitu pada *wavenumber* $576,72\text{ cm}^{-1}$ dan $441,7\text{ cm}^{-1}$. Pada *wavenumber* $3489,23\text{ cm}^{-1}$ terdapat vibrasi gugus O-H. Vibrasi gugus O-H ini merupakan pengotor yang dimungkinkan berasal dari H_2O yang terperangkap dalam proses pembentukan endapan selama sintesis. Selain itu, terdapat pula *wavenumber* $2931,8\text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan vibrasi gugus fungsi CH_2 . Vibrasi gugus amine tersier juga terbaca pada *wavenumber* $1384,89\text{ cm}^{-1}$ dan $1267,23\text{ cm}^{-1}$. Vibrasi gugus Fe-O yang terbaca dimungkinkan berasal dari senyawa goethite (FeOOH). FeOOH yang dihasilkan apabila dilihat dari mekanisme reaksi pada sub bab IV.5 merupakan produk intermediet sebelum terbentuknya partikel magnetite (Fe_3O_4) yang diharapkan. Sedangkan gugus CH_2 dan amine tersier mengindikasikan masih terdapatnya EDTA pada partikel. EDTA diperkirakan masih mengikat ion Fe sehingga membentuk kompleks Fe-EDTA yang ikut mengendap sebagai pengotor pada hasil sintesis.



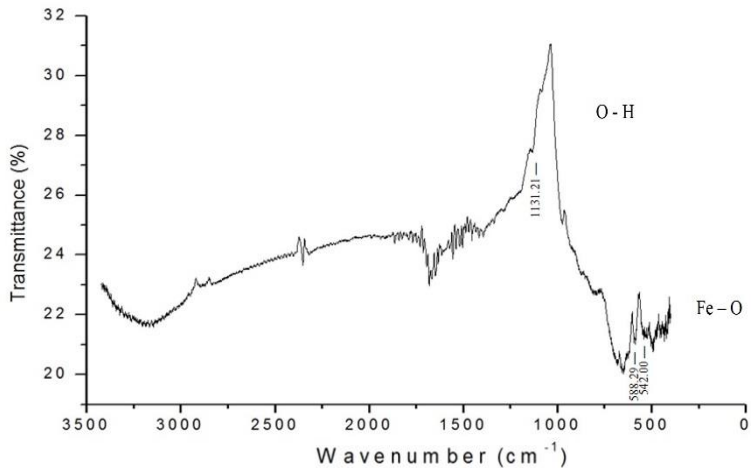
Gambar IV.6 Foto Hasil Sintesis pada 2V, pH 3, dengan rasio $\text{Fe}^{3+} : \text{Fe}^{2+}$ sebesar 1:1



Gambar IV.7 Hasil Analisis FTIR pada Beda Potensial 2 Volt

Selain pada beda potensial 2V, uji FTIR juga dilakukan pada hasil sintesis dengan kondisi beda potensial 5V, rasio larutan FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 1:1 dan suasana asam yaitu pada pH 3. Apabila dilihat pada pembacaan puncak hasil XRD untuk kondisi sintesis yang sama (dapat dilihat pada gambar IV.2 a), partikel yang dihasilkan adalah partikel magnetite. Hasil XRD ini diperkuat dengan pembacaan vibrasi ikatan pada hasil analisa FTIR.

Gambar IV.8 menunjukkan hasil percobaan dengan variabel rapat arus 5V, rasio larutan FeSO_4 dan $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 1:1 dan suasana asam yaitu pada pH 3. Pada gambar dapat dilihat vibrasi dari gugus Fe-O, yaitu pada *wavenumber* 542,00 dan 588,29 cm^{-1} . Selain itu, terdapat pula *wavenumber* 1132,21 cm^{-1} yang menunjukkan vibrasi gugus fungsi O-H. Vibrasi gugus Fe-O menunjukkan terbentuknya partikel Fe_3O_4 , sedangkan vibrasi gugus O-H dimungkinkan berasal dari pengotor berupa senyawa FeOOH .



Gambar IV.8 Hasil Analisis FTIR pada Beda Potensial 5V

IV.5 Mekanisme Pembentukan Magnetite

EDTA yang merupakan *chelating agent*, mula-mula akan berikatan dengan Fe membentuk kompleks Fe-EDTA. Kestabilan kompleks metal-EDTA akan terganggu seiring dengan penurunan pH dan penambahan ion OH⁻. Terganggunya kestabilan akan menyebabkan terlepasnya ion Fe dari kompleks Fe-EDTA. Hal ini menjelaskan fenomena kecenderungan terbentuknya partikel magnetite pada suasana pH asam, karena Fe yang terlepas akan bereaksi dengan OH⁻ hasil reduksi air yang pada akhirnya akan membentuk partikel magnetite.

Pada katoda, terjadi reaksi reduksi air yang akan menghasilkan ion OH⁻ untuk kebutuhan reaksi dengan ion Fe sesuai dengan reaksi berikut :



Selain itu, terjadi pula reaksi oksidasi air pada anoda sesuai dengan reaksi berikut:



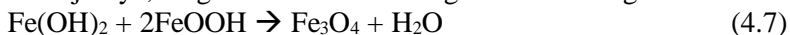
Selanjutnya ion Fe akan bereaksi dengan ion OH⁻ sesuai dengan reaksi berikut :



Oksigen yang dihasilkan oleh reaksi oksidasi air akan berperan membentuk FeOOH sesuai dengan persamaan berikut:



Selanjutnya, magnetite terbentuk dengan reaksi sebagai berikut :



Mekanisme pembentukan magnetite yang telah kami jelaskan di atas mengikuti mekanisme pembentukan magnetite yang telah diusulkan oleh Fajaroh dkk (2011). Akan tetapi terdapat perbedaan antara mekanisme pembentukan magnetite yang diusulkan Fajaroh dkk (2011) tersebut yaitu pada sumber ion Fe untuk reaksi. Berdasarkan Fajaroh dkk, ion Fe bersumber dari elektroda berupa besi, sedangkan pada penelitian ini ion Fe didapatkan dari kompleks metal-EDTA.

Pada penelitian yang dilakukan oleh Fajaroh dkk (2011) sumber ion Fe berupa Fe²⁺, sedangkan dalam penelitian ini digunakan dua buah sumber ion Fe yaitu Fe²⁺ dari larutan FeSO₄ dan Fe³⁺ dari larutan Fe₂(SO₄)₃ yang mana keduanya akan membentuk hidroksida besi sesuai dengan persamaan (4.3) dan (4.4). Selain itu, dalam penelitian juga dilakukan percobaan hanya dengan menggunakan ion Fe³⁺. Dalam kondisi ini diperkirakan sebagian ion Fe³⁺ tereduksi menjadi ion Fe²⁺ sesuai dengan reaksi (4.8). Dan sebagian lagi tetap dalam bentuk Fe³⁺

Reduksi ion Fe³⁺ menjadi ion Fe²⁺:



Selain pembentukan Fe_3O_4 juga terdapat reaksi pembentukan Fe_2O_3 pada beberapa variabel. Salah satunya adalah pada suasana basa yaitu pH 8. Reaksi pembentukan Fe_2O_3 diperkirakan sama dengan reaksi pembentukan karat di alam.

Pada katoda terjadi reduksi air yang akan menghasilkan ion OH^- untuk kebutuhan reaksi dengan ion Fe sesuai dengan reaksi berikut :



Ion Fe^{2+} bergerak menuju katoda dan mengalami oksidasi dan membentuk ion Fe^{3+} . Selanjutnya, ion OH^- juga mengalami reaksi oksidasi sesuai dengan reaksi berikut :



Ion Fe^{3+} akan bereaksi O_2 sesuai dengan reaksi berikut :



(halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB V

KESIMPULAN

V.1 Kesimpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan, dapat diambil kesimpulan sebagai berikut :

1. Partikel magnetite berhasil disintesis dengan metode elektrokimia. Kondisi sintesis optimal adalah pada 5 volt, dengan pH larutan 3, dengan rasio $\text{Fe}^{2+}:\text{Fe}^{3+}$ sebesar 1:1.
2. Pada kondisi asam partikel yang dihasilkan merupakan magnetite dengan pengotor berupa maghemite, sedangkan pada kondisi basa partikel yang dihasilkan adalah maghemite dengan pengotor FeOOH . Sumber ion Fe dan rasio ion Fe berpengaruh terhadap intensitas puncak pola difraksi, percobaan dengan $\text{Fe}^{2+}:\text{Fe}^{3+}$ sebesar 1:1 lebih banyak menghasilkan kesesuaian puncak pola difraksi magnetite. Beda potensial mempengaruhi diameter partikel, semakin besar beda potensial maka diameter partikel yang dihasilkan semakin kecil.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR PUSTAKA

- Berry, C.C. and Curtis A.S.G. (2003). Functionalisation of Magnetic Nanoparticles for Application in Biomedicine. *Journal of Physics D: Applied Physics* 36: R198-R206
- Cabrera, L., Gutierrez, S., Menendez, N., Morales, M.P., Herrasti, P. (2008). Magnetite Nanoparticles: Electrochemical Synthesis and Characterization, *Electrochimica Acta* 53: 3436-3441
- Cornell, R.M. and Schwertmann, U. (2003). *The Iron Oxides: Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses*. WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KgaA
- Fajaroh, F., Setyawan, H., Widiyastuti, W., Winardi, S. (2012). Synthesis of Magnetite Nanoparticles by Surfactant-Free Electrochemical Method in an Aqueous System. *Advanced Powder Technology* 23: 328–333
- Jeffrey, et al. (1989). *Vogel's Textbook of Quantitative Chemical Analysis* 5th Edition. Harlow: Longman Scientific&Technical
- Marques, R F.C., Garcia, C., Lecante, P., Ribeiro, Sidney J.L., Noe, L., Silva, Nuno J.O., Amaral, Vitor S., Millan, A., Verelst, M. (2008). Electro-precipitation of Fe₃O₄ nanoparticles in ethanol. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 04: 165.
- Nakamoto, K. (1986). *Infrared and Raman Spectra of Inorganic and Coordination Compounds* 4th Edition. John Wiley and Sons.
- Pankhurst, Q.A., Connolly, J., Jones, S.K., and Dobson, J. (2003). Applications of Magnetic Nanoparticles in Biomedicine, *Journal of Physics D: Applied Physics* 36: R167-R181
- Teja, A. S., Koh, P. Y. (2008). Synthesis, Properties, and Applications of Magnetic Iron Oxide Nanoparticles. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, xx: 1-24

(halaman ini sengaja dikosongkan)

BIOGRAFI PENULIS



Victoria Amanda Putri Chandra dilahirkan di Kota Batam pada 14 Februari 1994. Merupakan anak pertama dari tiga bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal sejak tahun 1999 di SD Kemala Bhayangkari Surabaya, SMP Negeri 6 Batam, dan SMA Negeri 1 Batam. Setelah lulus dari SMA, penulis meneruskan pendidikan formalnya di jurusan Teknik Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya pada tahun

2011.

Semasa kuliah, penulis hobi membaca, diskusi, dan mengikuti organisasi himpunan mahasiswa kampus. Selain itu, penulis juga pernah melaksanakan kerja praktek di PT. Badak NGL, Bontang.

Untuk menyelesaikan Tugas Akhir, sebagai syarat kelulusan jenjang S-1, di Laborarium Elektrokimia dan Korosi di bawah bimbingan Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng dan Ir. Minta Yuwana, M.S. Sedangkan bidang yang dipilih oleh penulis adalah Sintesis Partikel Magnetite menggunakan Metode Elektrokimia menggunakan Bantuan Chelating Agent. Penulis dapat dihubungi melalui email di : victoriaamandap@gmail.com

BIOGRAFI PENULIS



Agquiline Novianty Kantanegara dilahirkan di Jakarta pada 26 November 1993 oleh pasangan Sukardi dan Tjioe Sioe Lian. Penulis merupakan anak kedua dari tiga bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal sejak tahun 1999 di SD Santa Cicia Jakarta, SMP Santa Maria Della Strada Jakarta, dan SMA Tarakanita 2 Jakarta. Setelah lulus dari SMA, penulis meneruskan pendidikan formalnya di jurusan Teknik

Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya pada tahun 2011.

Semasa kuliah, penulis yang hobi membaca, diskusi, dan mengikuti organisasi himpunan mahasiswa kampus. Selain itu, penulis juga pernah melaksanakan kerja praktek di VICO Indonesia, Kalimantan Timur.

Untuk menyelesaikan Tugas Akhir, sebagai syarat kelulusan jenjang S-1, di Laborarium Elektrokimia dan Korosi di bawah bimbingan Prof. Dr. Heru Setyawan, M. Eng dan Ir. Minta Yuwana, M.S. Sedangkan bidang yang dipilih oleh penulis adalah Sintesis Partikel Magnetite dengan Metode Elektrokimia dengan Bantuan *Chelating Agent*. Penulis dapat dihubungi melalui email di : agquilinealin@gmail.com