

## SINTESIS NANOPARTIKEL MAGNETIK *CORE/SHELL* Fe/ OKSIDA Fe DENGAN METODE REDUKSI KIMIA

Grace Tj. Sulungbudi, Mujamilah dan Ari Handayani

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan

e-mail : grace@batan.go.id

### ABSTRAK

**SINTESIS NANOPARTIKEL MAGNETIK *CORE/SHELL* Fe/Oksida Fe DENGAN METODE REDUKSI KIMIA.** Makalah ini menyajikan proses sintesis nanopartikel magnetik dengan struktur *core/shell*, dimana bagian *core* (inti) berupa fasa Fe dan bagian *shell* (kulit) berupa fasa oksida Fe yang diharapkan menghasilkan nanopartikel dengan nilai magnetisasi tinggi. Proses sintesis dilakukan dengan proses reduksi  $\text{FeCl}_3$  oleh  $\text{NaBH}_4$  untuk membentuk bagian *core* yang diikuti dengan pembentukan fasa oksida besi dengan pereaksi *Trimethylamine N-oxide* (TMNO). Morfologi, komposisi fasa dan sifat magnetik struktur *core/shell* yang terbentuk dioptimalisasi dengan memvariasikan perbandingan komposisi  $\text{FeCl}_3$  dan  $\text{NaBH}_4$  pada rentang nilai perbandingan mol 1 hingga 3. Pengamatan morfologi menunjukkan telah terbentuknya struktur *core/shell* yang cukup sempurna dengan ukuran *core* maksimal < 40 nm dan *shell* ~ 5 nm terutama untuk komposisi 1 : 2. Namun hasil analisis fasa menunjukkan, selain fasa Fe dan oksida Fe, juga hadir fasa pengotor paduan Fe-B dan fasa turunan dari reduktor  $\text{NaBH}_4$ . Kondisi ini mempengaruhi pembentukan sifat magnetik sehingga nilai maksimum mencapai 72 emu/gram untuk komposisi 1: 2.

**Kata kunci :** Nanopartikel magnetik, Struktur *core-shell*, Fe/oksida Fe, Fasa, Sifat magnetik

### ABSTRACT

**SYNTHESIS OF MAGNETIC NANOPARTICLE OF CORE-SHELL Fe/Fe OXIDE USING CHEMICAL REDUCTION METHOD.** This paper describes the synthesis of magnetic nanoparticles having core-shell structure in which Fe phase as a core were surrounded by Fe oxide phase as a shell. This structure is expected to give a magnetic nanoparticle having high magnetization value. Fe/Fe oxide core/shell nanoparticles were synthesis through reduction process of  $\text{FeCl}_3$  by  $\text{NaBH}_4$  reductor to produce zero valent Fe followed by surface modification using TMNO reactant to form Fe oxide phase layer around Fe. Morphology, phase composition and magnetic properties were optimized by varying mole ratio of  $\text{FeCl}_3$  and  $\text{NaBH}_4$  between 1 and 3. TEM observation showed the formation of core/shell structure with core sizes < 40 nm and shell ~ 5 nm especially for 1 : 2 compositions. However, phase analysis result showed, besides the Fe and Fe oxides phase, impurities phase of the Fe-B alloy and  $\text{NaBH}_4$  derivative phase are also present. This condition affects the magnetic properties formation and result in magnetization maximum value of only 72 emu/gram for the 1 : 2 composition.

**Keywords :** Magnetic nanoparticles, Core-shell structure, Fe/Fe oxide, Phase, Magnetic properties

### PENDAHULUAN

Berbagai tipe nanopartikel magnetik akhir-akhir ini banyak dikembangkan untuk aplikasi biomedis, meliputi aplikasi dalam separasi magnetik unit biologi, pengiriman obat untuk terapi, hipertermia dalam terapi tumor dan agen penajam kontras untuk MRI [1, 2]. Tipe bahan nanopartikel magnetik yang digunakan biasanya berbasis oksida Fe seperti  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (*magnetite*),  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$  (*maghemite*) dan ferit yang memiliki kelebihan kompatibilitas dengan lingkungan biologi. Bagaimanapun aplikasi-aplikasi ini dibatasi oleh nilai magnetisasi bahan yang dalam keadaan murni hanya

mencapai maksimum 92 emu/gram. Nilai ini akan makin menurun dengan adanya efek dilusi akibat proses pelapisan nanopartikel dengan bahan non magnetik untuk memberi permukaan yang dapat difungsikan untuk aplikasi-aplikasi di atas.

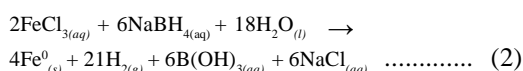
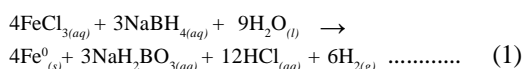
Aplikasi nanopartikel magnetik, ebagai agen separasi, selain membutuhkan modifikasi permukaan dengan bahan organik yang sesuai untuk menangkap unit biologi, juga mensyaratkan nilai magnetisasi yang tinggi. Salah satu kandidat bahan yang dapat memenuhi persyaratan ini adalah nanopartikel metal  $\text{Fe}^0$  (*Nano Zero*

Valent Iron (NZVI)) yang memiliki nilai magnetisasi sangat tinggi mendekati nilai untuk Fe *bulk* (218 emu/gram) [3]. Namun partikel nano ini memiliki permukaan yang sangat luas, sehingga tidak stabil secara termal, dan menjadi sangat reaktif pada proses oksidasi [4]. Berbagai usaha telah dilakukan untuk menyelesaikan permasalahan ini diantaranya memadukan Fe dengan metal *inert* lain (Pt dan Au) [5,6] ataupun stabilisasi permukaan nanopartikel dengan surfaktan organik [7] dan pelapisan dengan bahan anorganik [8].

Penumbuhan Pt pada berbagai suhu injeksi dalam proses dekomposisi termal prekursor besi pentakarbonil (Fe(Co)<sub>5</sub>) akan memberikan paduan sistem *core/shell* Fe-Pt dengan ukuran partikel terkontrol pada 10 nm *core* dan 2,5 nm *shell* tapi magnetisasi maksimum turun menjadi 100 emu/gram yang disebabkan oleh tidak seragamnya bentuk *core* dan tipisnya *shell* dalam sampel [5]. Dilain pihak, untuk sistem nanopartikel Fe-Au yang disintesis dengan proses reduksi *borohydride*, fasa α-Fe akan hadir hanya sebagai bagian dari komponen Fe dengan komponen lain berupa fasa amorf Fe<sub>1-x</sub>B<sub>x</sub> yang tidak diinginkan ataupun fasa oksida Fe yang kurang sempurna terkrystalisasi yang menghasilkan magnetisasi total rendah [6].

*Rute* sintesis lain dari sistem *core-shell* adalah proses reduksi Fe<sup>3+</sup> yang diikuti dengan proses pencucian dan pengendalian oksidasi dengan hasil akhir sistem *core/shell* Fe/oksida Fe. Proses sintesis melalui *rute* reduksi kimia ini, pada prinsipnya dilakukan dengan mereduksi ion Fe<sup>3+</sup> (dalam bentuk garamnya misalkan FeCl<sub>3</sub>) oleh reduktor *borohydride* (NaBH<sub>4</sub>).

Ada beberapa tipe persamaan reaksi yang biasa digunakan, sesuai dengan Persamaan (1) dan Persamaan (2) [9,10]:



Pada persamaan reaksi pertama, komposisi Fe<sup>3+</sup> diberikan berlebih dibanding NaBH<sub>4</sub> dan sebaliknya pada persamaan kedua. Mengacu pada beberapa hasil percobaan yang telah dilakukan [9,11], diperoleh bahwa sintesis dengan Fe<sup>3+</sup> berlebih cenderung menghasilkan fasa FeB sebagai hasil antara karena adanya sisa Fe<sup>3+</sup> yang tidak tereduksi oleh NaBH<sub>4</sub>. Karena itu beberapa peneliti memilih memberikan kelebihan NaBH<sub>4</sub> untuk dapat menyempurnakan proses reduksi dan menghasilkan peningkatan sifat magnetik nanopartikel [10,12]. Namun demikian nilai pasti rasio perbandingan Fe<sup>3+</sup> dan NaBH<sub>4</sub> yang akan memberikan sifat optimal belum dapat ditentukan.

Untuk mendapatkan informasi yang lebih jelas tentang masalah ini, hasil studi sintesis NZVI dengan variasi rasio Fe<sup>3+</sup> terhadap reduktor NaBH<sub>4</sub> dilaporkan pada makalah ini. Karakteristik nanopartikel meliputi

morfologi, fasa dan sifat magnetik nanopartikel *core-shell* yang terbentuk dianalisis dan dibahas untuk mendapatkan mekanisme reaksi reduksi dan pembentukan NZVI.

## METODE PERCOBAAN

Bahan-bahan yang digunakan dalam proses ini adalah FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O, NaBH<sub>4</sub>, *Trimethylamine N-oxide*, (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>NO (*TMNO*) serta etanol dan metanol yang diperoleh dari Merck dengan *grade pro analysis*. Gas N<sub>2</sub> dan Argon yang digunakan adalah dengan *grade UHP*.

Pembuatan sistem *core-shell* dilakukan secara bertahap mengacu pada literatur [13], diawali dengan penyiapan *core* Fe<sup>0</sup> atau NZVI dan tahap selanjutnya pembentukan *shell* oksida Fe. Untuk pembuatan *core* Fe, FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O dilarutkan dalam larutan campuran etanol/air (4:1 v/v) dan diaduk hingga diperoleh larutan homogen. Larutan *fresh* NaBH<sub>4</sub> diteteskan sambil diaduk secara konstan dengan adukan yang kuat. Seluruh proses ini dilakukan dalam suasana gas N<sub>2</sub> untuk mencegah terjadinya oksidasi pada NZVI. Selanjutnya endapan/presipitat hitam yang terbentuk disaring dan dicuci beberapa kali dengan ethanol murni. Endapan hasil cucian kemudian dikeringkan semalam dalam *oven* pada suhu 75 °C. Perbandingan mol antara FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O dan NaBH<sub>4</sub> divariasikan pada 6 rasio yang berbeda hingga diperoleh 6 sampel NZVI dengan komposisi awal seperti yang ditampilkan pada Tabel 1. Enam variasi rasio ini diambil dengan asumsi rasio tersebut berada dalam daerah kedua persamaan di atas.

Pada tahap kedua, untuk pembentukan *shell* oksida Fe, endapan kering dari tahap 1 sebanyak 130 mg ditambahkan ke dalam larutan 15 mg *Trimethylamine N-oxide* yang dilarutkan dalam *isopropyl alcohol*. Larutan disonikasi selama 40 menit. Endapan yang diperoleh dicuci 2 kali dengan metanol dan kemudian dikeringkan dengan tiupan gas Argon. Sampel kering baik sebelum maupun sesudah oksidasi, selanjutnya ditempatkan dalam botol dan disimpan dalam *vacuum desiccator* untuk proses dan karakterisasi selanjutnya.

Karakterisasi morfologi nanopartikel dilakukan menggunakan *Transmission Electron Microscope*

**Tabel 1.** Komposisi awal pembuatan NZVI dengan variasi perbandingan FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O dan NaBH<sub>4</sub>

Kode Sampel	Perbandingan FeCl <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O dan NaBH <sub>4</sub>
NZVI1	1 : 1,2
NZVI2	1 : 1,4
NZVI3	1 : 1,6
NZVI4	1 : 1,8
NZVI5	1 : 2,0
NZVI6	1 : 3,0

(TEM) JEOL JEM 1400 yang terpasang di FMIPA-UGM dengan magnifikasi maksimum 250.000. Untuk preparasi sampel, serbuk disonikasi dalam larutan etanol dan bagian supernatan diteteskan pada *grid formvar* yang telah dilapis karbon. Sampel dikeringkan terlebih dahulu sebelum pengamatan. Identifikasi fasa yang terbentuk dilakukan dengan menganalisis pola difraksi sinar-X sampel serbuk hasil pengukuran dengan Difraktometer Sinar-X PANalytical Xpert-Pro di PTNBR-BATAN. Pengukuran dilakukan dengan sumber CuK $\alpha$  pada rentang sudut 10° – 80°. Kurva histeresis magnetik serbuk nanopartikel diukur dengan *Vibrating Sample Magnetometer (VSM) OXFORD 1.2T* yang terpasang di PTBIN-BATAN pada suhu ruang dan medan luar maksimal 1 T.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

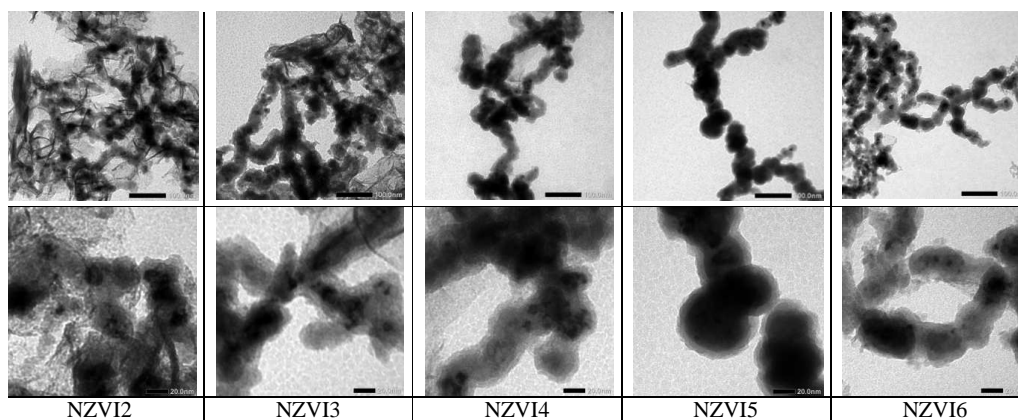
Foto TEM nanopartikel yang ditampilkan pada Gambar 1, memberikan data morfologi nanopartikel yang terbentuk dalam berbagai variasi rasio Fe<sup>3+</sup> dan NaBH<sub>4</sub>. Nanopartikel berbentuk bola *sferis* dan berjajar dalam deretan panjang terbentuk dengan ukuran nanopartikel yang makin membesar dengan meningkatnya fraksi NaBH<sub>4</sub> sampai nilai rasio = 2 (NZVI5) dan kembali mengecil dengan penambahan reduktor (NZVI6). Pada bagian luar deretan bola terbentuk lapisan dengan warna yang lebih terang dibanding bagian bola di tengah. Adanya bentukan gelap dan terang ini memberikan asumsi awal terbentuk struktur *core* (bagian bola gelap) dan struktur *shell* (bagian bola terang).

Bagian *core*, yang dianalisis sebagai Fe<sup>0</sup>, mempunyai ukuran 10 nm hingga 40 nm yang tumbuh dan makin sempurna dengan meningkatnya fraksi *borohydride* hingga rasio 2 dan sebaliknya untuk lapisan *shell* yang makin menipis dan sempurna mencapai ketebalan 5 nm memberikan total ukuran nanopartikel *core/shell* maksimal 50 nm. Lapisan *shell* ini pada fraksi reduktor rendah akan mempunyai komposisi oksida Fe maupun fasa-fasa lain dari sisa reaktan. Seiring dengan peningkatan fraksi reduktor yang makin

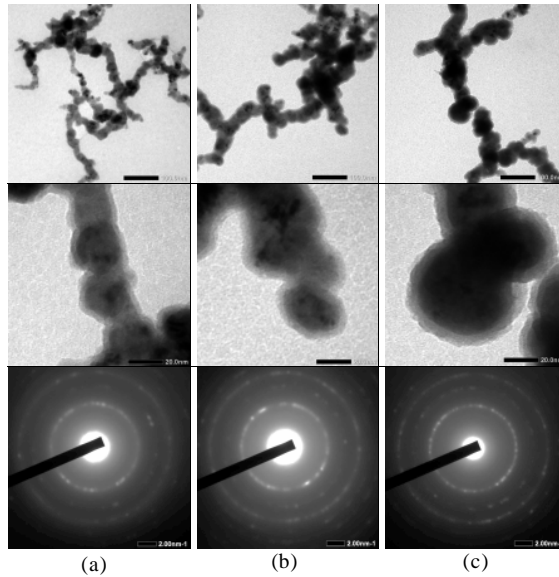
menyempurnakan reaksi pembentukan Fe<sup>0</sup>, fraksi-fraksi sisa reaktan juga akan berkurang dan akhirnya tersisa lapisan *shell* dengan fasa oksida Fe. Namun pada rasio reduktor tinggi (NZVI6) fraksi reduktor akan berlebih dan kembali menghambat pertumbuhan Fe<sup>0</sup> dan mengisi bagian lapisan.

Data ini memberikan fakta ketidaksesuaian reaksi pada persamaan reaksi (2) dalam percobaan ini. Lapisan *shell* ini juga dianalisis mencegah terjadinya agregasi nanopartikel Fe<sup>0</sup> membentuk gumpalan [14]. Mekanisme pembentukan dan pertumbuhan bola nanopartikel ini dianalisis juga dipengaruhi oleh tahapan-tahapan proses yang dilakukan. Pada Gambar 2 ditampilkan pengamatan yang lebih seksama perubahan morfologi nanopartikel NZVI5 setelah tahapan reduksi, setelah pemanasan dan setelah proses oksidasi dengan TMNO.

Seperti halnya pada pembahasan efek fraksi reduktor, pada tahap awal setelah reduksi dan pencucian (Gambar 2(a)), *core* yang terbentuk belum homogen baik dari sisi ukuran maupun distribusi komposisi. Bagian lapisan *shell* juga masih belum terbentuk dengan kontras yang jelas dengan bagian *core* yang menunjukkan masih belum homogennya fasa *shell*. Pengamatan lebih dekat, pada perbesaran 250.000 memperlihatkan *core* pada ukuran < 20 nm dan *shell* yang terdegradasi pada beberapa tingkat kegelapan. Proses pemanasan dalam oven selama 8 jam (Gambar 2(b)) memberikan nanopartikel dengan *core* yang lebih homogen menunjukkan selama pemanasan reaksi pembentukan *core* Fe<sup>0</sup> tetap berlangsung. Hasil ini sesuai dengan penelitian sebelumnya [11] yang menyatakan adanya tahapan kesempurnaan perkembangan pembentukan *core* sejalan dengan perkembangan proses reduksi, pencucian dan pemanasan. Pada tahap akhir, proses oksidasi menyempurnakan struktur *core/shell* yang terbentuk yang terlihat dengan jelas pada Gambar 2(c) *core* terbentuk dengan ukuran maksimal 40 nm dan *shell* 5 nm. Namun demikian kehadiran kedua fasa ini belum terkonfirmasi pada pola *Selected Area Electron Diffraction (SAED)* yang hanya menunjukkan lingkaran-lingkaran difraksi untuk Fe untuk puncak-puncak (110),



Gambar 1. Foto TEM morfologi nanopartikel magnetik hasil proses reduksi-oksidasi pada berbagai variasi rasio Fe<sup>3+</sup> : NaBH<sub>4</sub> (garis skala menyatakan 100 nm dan 20 nm)



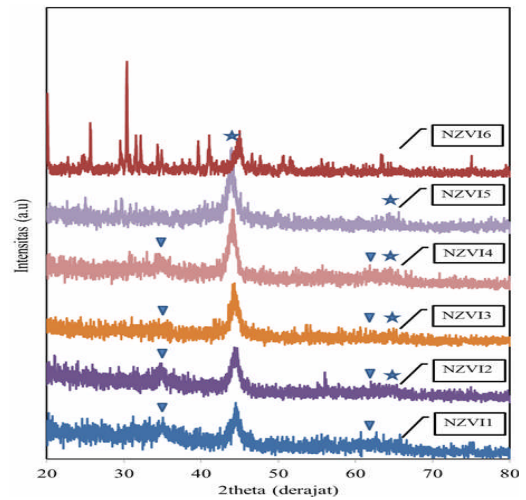
**Gambar 2.** Foto TEM (pada perbesaran 50.000 dan 250.000) dan pola SAED nanopartikel magnetik NZVI5 : (a). setelah proses reduksi, (b). setelah pemanasan dan (c). setelah proses oksidasi.

(200), (211) dan (220) baik untuk sampel dari proses reduksi hingga tahapan reaksi oksidasi. Kesempurnaan pembentukan Fe tercermin dari makin tajamnya garis difraksi yang terbentuk. Ketidakhadiran garis difraksi untuk fasa oksida Fe mungkin disebabkan masih rendahnya fraksi fasa oksida Fe dibanding fasa Fe dan struktur oksida Fe yang terbentuk masih berbentuk amorf atau derajat kristalinitasnya rendah. Analisis kedua didasari pada gambaran belum mulusnya permukaan *shell* yang terbentuk.

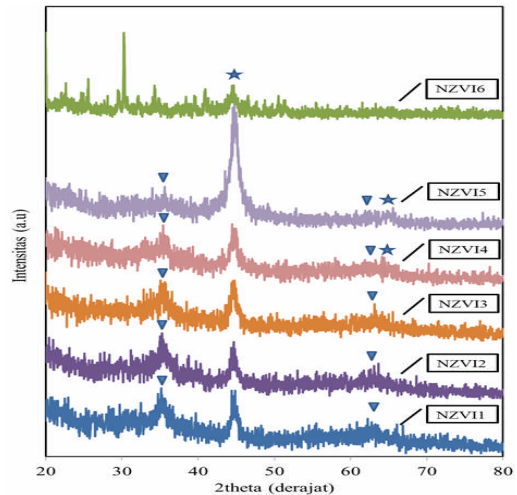
Kepastian pembentukan fasa diidentifikasi lebih jauh dari pola difraksi sinar-X yang ditampilkan pada Gambar 3 untuk sampel yang telah mengalami proses reduksi dan pemanasan dan pada Gambar 4 untuk sampel yang telah dioksidasi.

Dari Gambar 3 terlihat bahwa fasa oksida Fe telah terbentuk tetapi masih dalam struktur amorf bahkan sebelum dilakukan tahapan proses oksidasi dengan fraksi oksida besi yang menurun dengan naiknya fraksi *borohydride* kecuali pada sampel NZVI6. Demikian juga proses oksidasi dengan *TMNO* menumbuhkan fasa oksida Fe dengan lebih baik seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.

Dari bentuk puncak yang menajam dan *peak to background ratio* yang meningkat dengan peningkatan fasa *borohydridee* dan proses oksidasi dapat diasumsikan terjadinya proses kristalisasi yang lebih baik. Untuk sampel NZVI6, muncul puncak-puncak lain yang teridentifikasi sebagai puncak  $\text{NaBH}_4$ . Fakta ini kembali memperjelas ketidaksesuaian penerapan Persamaan reaksi (2) dalam pembentukan sistem *core-shell*. Bahkan pada tahapan awal, pada sampel ini fasa Fe yang terbentuk cenderung berstruktur amorf yang menjadi terkristalisasi setelah tahapan kedua

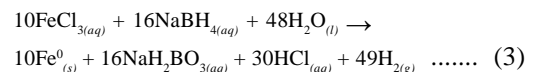


**Gambar 3.** Pola difraksi sinar-X sampel NZVI hasil proses reduksi  $\text{FeCl}_3$  dengan  $\text{NaBH}_4$  pada berbagai nilai  $\text{FeCl}_3 : \text{NaBH}_4$ . Tanda  $\nabla$  menyatakan puncak fasa oksida Fe dan tanda \* menyatakan puncak Fe



**Gambar 4.** Pola difraksi sinar-X sampel NZVI setelah oksidasi dengan *TMNO*. Tanda  $\nabla$  menyatakan puncak fasa oksida Fe dan tanda \* menyatakan puncak Fe

menjadi fasa Fe dengan derajat kristalisasi yang rendah. Dengan mengacu pada data morfologi dan fasa yang diperoleh, disimpulkan bahwa reaksi pembentukan *core-shell* cenderung lebih mengikuti reaksi kimia seperti pada Persamaan (3) [15] :

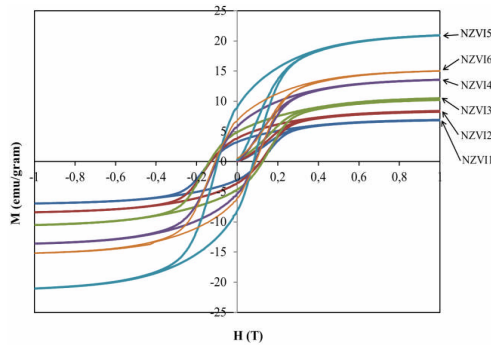


Dari Persamaan (3), kesetimbangan reaksi akan terjadi pada rasio  $\text{Fe}^{3+}$  dan  $\text{NaBH}_4$  (1:1,6). Sedangkan hasil pada percobaan ini menunjukkan reaksi terbaik terjadi pada rasio 1:2 (NZVI5) yang menunjukkan perlunya ditambahkan kelebihan (*excess*) reduktor  $\text{NaBH}_4$  untuk menyempurnakan reaksi. *Excess* reduktor ini dianalisis diperlukan untuk mereduksi kembali  $\text{Fe}^0$  yang telah terbentuk namun berubah kembali menjadi  $\text{Fe}^{3+}$  akibat proses oksidasi oleh medium pereaksi yang

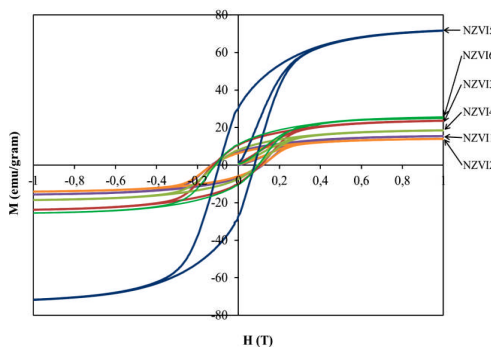
bersifat cenderung asam selama tahapan proses [12]. Hasil pengukuran pH larutan setelah proses reduksi mendukung asumsi ini.

Pada fraksi reduktor rendah pH berada pada suasana asam (nilai pH 3-5), yang menunjukkan fasa basa (*Na-borohydride*) telah habis terpakai dan menyisakan fasa asam (HCl) dan Fe ion. Ion Fe ini akan bereaksi kembali dengan ion  $H_2BO_3^-$  dan menghasilkan fasa FeB atau  $Fe_2B$  selain fasa  $Fe^0$  yang juga ditemukan pada banyak penelitian lain, baik akibat kurangnya fraksi *borohydride* maupun karena kurang cepatnya reaksi  $Fe^{3+}$  dengan reduktor *borohydride* [11]. Puncak difraksi utama fasa ini (puncak (200)) berada dalam posisi yang berimpit dengan posisi puncak difraksi  $Fe^0$  (110) ( $2\theta : 44,5^\circ$ ) [16]. Pada rasio 1:1,6 nilai pH telah mulai berada pada nilai normal yang menunjukkan terjadinya kesetimbangan fasa-fasa asam-basa dalam larutan dan reaksi telah berjalan optimal. Namun demikian, *excess* reduktor pada rasio 1 : 2 tetap diperlukan yang digunakan untuk menstabilkan pembentukan  $Fe^0$  terhadap reaksi oksidasi selama proses pencucian. Pada rasio  $> 2$  (NZVI6), terjadi kelebihan fasa reduktor sehingga pada akhir proses fasa ini akan tersisa dalam sampel baik sebagai bahan awal ataupun fasa turunannya dan terdeteksi secara jelas pada pola difaksinya.

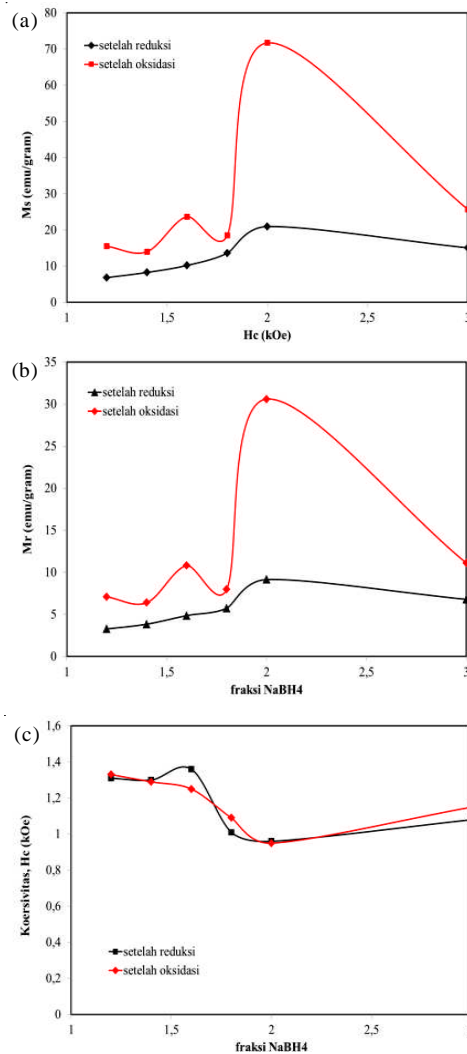
Identifikasi lanjut pembentukan nanopartikel magnetik dilakukan dengan karakterisasi sifat magnetik bahan. Pada Gambar 5 dan Gambar 6 ditampilkan kurva histeresis nanopartikel hasil pengukuran dengan *Vibrating Sample Magnetometer (VSM)* pada suhu ruang untuk sampel dengan berbagai rasio  $Fe^{3+}$  dan



Gambar 5. Kurva histeresis nanopartikel magnetik sesudah proses reduksi dan pemanasan



Gambar 6. Kurva histeresis nanopartikel magnetik sesudah proses oksidasi



Gambar 7. Nilai magnetisasi saturasi  $M_s$  (a), magnetisasi remanen  $M_r$  (b) dan medan koersiv  $H_c$  (c) sebagai fungsi konsentrasi  $NaBH_4$

$NaBH_4$  sesudah proses reduksi dan pemanasan serta sesudah proses oksidasi. Nilai magnetisasi saturasi  $M_s$ , magnetisasi remanen  $M_r$  dan medan koersiv  $H_c$  sebagai fungsi konsentrasi  $NaBH_4$  ditampilkan secara grafis pada Gambar 7.

Secara umum terlihat pada ketiga grafik tersebut, kecenderungan pembentukan sifat-sifat magnetik yang mendukung semua pembahasan fasa dan morfologi sebelumnya. Nilai magnetisasi  $M_s$  dan  $M_r$  makin meningkat dengan meningkatnya fraksi reduktor dan mencapai maksimum pada NZVI5 dan kembali menurun pada NZVI6. Data medan koersiv menunjukkan nilai yang cukup tinggi dan minimal tercapai pada sampel NZVI5. Nilai koersiv ini menunjukkan kecenderungan sifat magnetik permanen bahan dan bukannya *soft magnetic* atau superparamagnetik murni seperti halnya untuk bahan  $\alpha-Fe$  atau nanopartikel oksida Fe. Dengan mengacu pada pembahasan di atas, data ini mendukung analisis kehadiran fasa FeB atau  $Fe_2B$  yang memiliki anisotropi kristalin [17] dan pada akhirnya memberikan nilai koersivitas yang tinggi

karena adanya interaksi anisotropi yang kuat dalam sistem partikel [18].

Adanya interaksi ini juga menjelaskan kecenderungan nanopartikel yang terbentuk dalam rantai panjang dan bukannya dalam agregat sferis [14]. Nilai koersivitas yang menurun menunjukkan makin berkurangnya fasa anisotrop ini dengan meningkatnya fasa reduktor. Fasa ini menjadi fasa pengganggu dalam keseluruhan sintesis nanopartikel magnetik karena akan mengurangi nilai magnetisasi yang tinggi dari Fe<sup>0</sup>. Perlu usaha optimalisasi lanjut untuk menghilangkan fasa ini untuk mencapai target sintesis mendapatkan nanopartikel superparamagnetik dengan nilai magnetisasi yang tinggi. Salah satu fokus peningkatan adalah dengan penyempurnaan proses pencucian dan pemanasan pada sampel NZVI5 yang diharapkan akan mengeliminasi fasa-fasa tambahan ini.

## KESIMPULAN

Nanopartikel Fe<sup>0</sup> telah berhasil disintesis dengan proses reduksi garam FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O dengan reduktor NaBH<sub>4</sub> dalam medium etanol/air dan lingkungan Argon pada rasio Fe<sup>3+</sup> dan NaBH<sub>4</sub> (1:1,2) hingga (1:3). Ukuran, morfologi, fasa dan sifat magnetik yang terbentuk dipengaruhi nilai rasio ini dan pada penelitian ini diperoleh rasio dengan sifat optimal untuk nanopartikel magnetik adalah pada rasio 1:2. Pada rasio ini diperoleh nanopartikel magnetik dengan struktur *core-shell* Fe<sup>0</sup>/oksida Fe dengan ukuran maksimal 40 nm *core* Fe<sup>0</sup> dan 5 nm *shell* oksida Fe dengan nilai magnetisasi 72 emu/gram dan koersivitas ~ 1kOe. Nilai magnetisasi nanopartikel belum maksimal disebabkan oleh masih hadirnya fasa-fasa pengotor yang menurunkan nilai magnetisasi total dan adanya struktur anisotropi fasa pengotor FeB/Fe<sub>2</sub>B yang mengakibatkan terjadinya struktur rantai dari nanopartikel *core-shell* dengan interaksi antar nanopartikel yang kuat satu sama lain dan memberikan nilai magnetisasi remanen yang cukup tinggi (~ 30 emu/gram pada sampel dengan rasio 1:2).

## DAFTAR ACUAN

- [1]. RUI HAO, RUIJUN XING, ZHICHUAN XU, YANGLONG HOU, SONG GAO and SHOUHENG SUN, *Adv. Mater.*, **22** (2010) 2729-2742
- [2]. ABOLFAZL AKBARZADEH, MOHAMAD SAMIEI and SOODABEH DAVARAN, *Nanoscale Research Letters*, **7** (2012) 144
- [3]. XIAO-QIN LI, DANIEL W. ELLIOTT and WEI-XIAN ZHANG, *Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences*, **31** (2006) 111-122
- [4]. JAMES T. NURMI, PAUL G. TRATNYEK, VAISHNA VISARATHY, DONALD R. BAER, JAMES E. AMONETTE, KLAUS PECHER, CHONG MIN WANG, JOHN C. LINEHAN, DEAN W. MATSON, R. LEE PENN and MICHELLE D. DRIESSEN, *Environ. Sci. Technol.*, **39** (2005) 1221-1230
- [5]. H. KHURSHID, V. TZITZIOS, L COLAK, F. FANG and G.C. HADJIPANAYIS, *Journal of Physics: Conference Series*, **200** (2010) 072049
- [6]. SUNG-JIN CHO, AHMED M. SHAHIN, GARY J. LONG, JOSEPH E. DAVIES, KAILIU, FERNANDE GRANDJEAN and SUSAN M. KAUZLARICH, *Chem. Mater.*, in press; cond-mat/0512413
- [7]. GUANDONG ZHANG, YIFENG LIAO and IAN BAKER, *Materials Science and Engineering C*, **30** (2010) 92-97
- [8]. MINGDE FAN, PENG YUAN, JIANXI ZHU, TIANHU CHEN, AIHUA YUAN, HONGPING HE, KANGMIN CHEN and DONG LIU, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **321** (2009) 3515-3519
- [9]. JAE-MIN LEE, JI-HUN KIM, JIN-WOOK LEE, JAE-HWAN KIM, HO-SEOK LEE, YOON-SEOK CHANG, JAMES T. NURMI and PAUL G. TRATNYEK, *Proceedings of the Sixth International Conference on Remediation of Chlorinated and Recalcitrant Compounds*, (2008)
- [10]. R. YUVAKKUMAR, V. ELANGO, V. RAJENDRAN, N. KANNAN, *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*, **6**(4) (2011) 1771-1776
- [11]. GEORGE N. GLAVEE, KENNETH J. KLABUNDE, CHRISTOPHER M. SORENSEN and GEORGE C. HADJIPANAYIS, *Inorganic Chemistry*, **34**(1) (1995) 28-35
- [12]. RĂZVAN-IOAN PANȚURU, GHEORGHİȚA JINESCU, EUGENIA PANȚURU, ANTOANETA FILCENCO-OLTEANU, ROZALIA RĂDULESCU, *U.P.B. Sci. Bull., Series C*, **72**(4) (2010) 207-219
- [13]. A. HUEY, GUANDONG ZHANG, DANIEL CULLEN, IAN BAKER, *Synthesis and Characterization of Iron Composite Nanoparticles for Cancer Therapy*, Center for Nanomaterials Research, (2008)
- [14]. LIRONG LU, ZHIHUI AI, JINPO LI, ZHI ZHENG, QUAN LI, and LIZHI ZHANG, *Crystal Growth and Design*, **7**(2) (2007) 459-465
- [15]. YOU QIANG, AMIT SHARMA, JIJI ANTONY, ALAN MCCONNAUGHEY, RYAN SOUZA and YUFENG TIAN, *Nanomagnetism and Magnetic Nanoparticles for Biomedical Application*, IMR Shenyang Summer School, (2008)
- [16]. INTERNATIONAL CENTRE FOR DIFFRACTION DATA, PDF 96-901-3464, PDF 96-101-0475, (2007)
- [17]. OZKAN OZDEMIRA, METIN USTAB, CUMA BINDALA, A. HIKMET UCISIK, *Vacuum* **80**, (2006) 1391-1395
- [18]. MISLAV MUSTAPIC, DAMIR PAJIC, NIKOLINA NOVOSEL, EMIL BABIC, KRESO ZADRO, MARINA CINDRIC, JOSIP HORVAT, ZELJKO SKOKO, MIRJANA BIJELIC and ANDREY SHCHERBAKOV, *Croat. Chem. Acta*, **83**(3) (2010) 275-282