

Sintesis Nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ dengan Metode Sol-Gel

Aisyiah Restutiningsih Putri Utami^{a*}, Eko Sri Kunarti^b, M. Sulthon Nurharmansyah Putra^c

^a Kimia FMIPA-K, Universitas Negeri Manado, Tondano, 95618, Indonesia

^bDepartemen Kimia, FMIPA, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, 55281, Indonesia,

^cKimia, FMIPA, Universitas Pertahanan Republik Indonesia, Bogor, 10430, Indonesia

INFO ARTIKEL

Diterima 14 Februari 2023

Disetujui 28 April 2023

Key word:

Magnetite

Sol-Gel Method

Silica

nanocomposite

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$

Kata kunci:

Magnetit

Metode Sol-Gel

Silika

nanokomposit

$\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$

ABSTRACT

The research was began with the synthesis of magnetite by reacting $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ and $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ by co-precipitation and sonication method. Then magnetite covered by silica was sintisized using sonication method by reacting TEOS with magnetit in base condition, and then coated by TiO_2 using sol-gel method followed by calcination by using TTIP as a precursor. The X-Ray Diffractometer (XRD) were used to characterize the nanoparticles. The XRD defractofram showed the diffraction pattern 2θ (o) at 25.38° , 35.881° , 38° , $38,797^\circ$, 48.26° , 54.22° , $55,4^\circ$, 63.119° , and 69.24° that based on JCPDS data No. 21-1272 that showed TiO_2 anatase stucture.

ABSTRAK

Penelitian diawali dengan sintesis magnetit dengan merekasikan $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ dengan metode ko-precipitasi dan sonikasi. Selanjutnya melapisi magnetit dengan silika dengan metode sonikasi dengan mereaksikan TEOS dengan magnetit pada kondisi basa, dan selanjutnya melapisi dengan TiO_2 menggunakan metode sol-gel yang dilanjutkan dengan kalsinasi dengan prekursor TTIP. X-Ray Diffractometer (XRD) digunakan untuk karakterisasi nanopartikel. Hasil Defractogram XRD menunjukkan pola difraksi 2θ (o) pada 25.38° , 35.881° , 38° , $38,797^\circ$, 48.26° , 54.22° , $55,4^\circ$, 63.119° , dan 69.24° yang berdasarkan data JCPDS No. 21-1272 menunjukkan struktur TiO_2 anatase.

*e-mail: aisyiahutami@unima.ac.id

*Telp: 081393897823

Pendahuluan

Energi cahaya menginduksi perubahan fisika dan kimia pada sebagian besar senyawa organik. Zat warna, makanan, farmasi, produk kosmetik, dan polimer merupakan

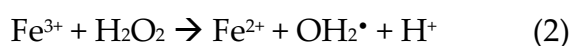
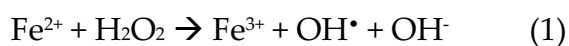
contoh-contoh senyawa yang dapat didegradasi dengan cahaya, atau yang biasa disebut dengan degradasi terinduksi cahaya atau fotodegradasi. Fotodegradasi dapat juga diimplementasikan untuk pemurnian limbah cair pada industri tekstil dan

limbah industri kertas [1]. Pengolahan limbah dengan fotodegradasi banyak mendapat perhatian beberapa dekade ini karena ramah lingkungan.

Pada umumnya fotokatalis yang digunakan untuk pemurnian limbah cair adalah titanium dioksida (TiO_2) [2]. TiO_2 memiliki sifat semikonduktor [3]. Fotokatalis TiO_2 tidak menimbulkan limbah tambahan pada penggunaannya dan aktif di bawah sinar ultraviolet [4].

Pada mekanisme oksidasi fotokatalitik, pasangan hole (+p) dan elektron (e^-) di permukaan fotokatalis (TiO_2) dihasilkan ketika radiasi cahaya diserap TiO_2 . Positif hole mengoksidasi molekul air yang terserap pada TiO_2 , dan radikal hidroksil ($\bullet\text{OH}$) terbentuk. Sementara itu, elektron menghasilkan radikal anion superoksida (O_2^-). Senyawa organik akan bereaksi dengan $\bullet\text{OH}$ dan O_2^- , dan mengalami degradasi membentuk karbondioksida dan air [5].

Pemisahan dengan medan magnet menyajikan proses yang mudah untuk menggunakan kembali material fotokatalis [6]. Salah satu caranya adalah dengan menambahkan material magnetik seperti magnetit (Fe_3O_4), maghemit ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$), dan hematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) pada fotokatalis [7]. Fotoatalis yang dilapisi besi oksida akan mudah dipisahkan pada larutan dan dapat digunakan kembali. Mengkombinasikan Fe_3O_4 dengan TiO_2 akan meningkatkan aktivitas fotokatalitik TiO_2 dalam hal kemampuannya yang mudah dipisahkan dengan larutan [8]. Peningkatan efisiensi katalis yang ditambahkan ion besi ditunjukkan pada persamaan. (1) dan (2) [9].



Selanjutnya, komposit $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$ telah lama dipelajari [10]. Silika adalah salah satu material pendukung katalis yang baik karena kestabilan termal yang bagus, tidak mudah bereaksi dengan senyawa kimia, dan luas permukaan yang tinggi [11]. SiO_2 merupakan pelapis yang potensial, karena hidrofobisitasnya [10]. Silikon dioksida mempunyai luas permukaan yang cukup tinggi yakni diatas $300 \text{ m}^2/\text{g}$ dengan biokompabilitas yang bagus [12]. Beberapa metode yang digunakan untuk mensintesis material ini dengan cara reaksi polimerisasi dan sol-gel [10].

Pada penelitian ini, dilakukan sintesis $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ nanokomposit, modifikasi fotokatalis dengan Fe_3O_4 bertujuan agar senyawa mudah dipisahkan dalam larutan dan mudah untuk digunakan kembali. Modifikasi TiO_2 dengan SiO_2 diharapkan dapat meningkatkan kestabilan nanokomposit.

Bahan dan Metode

Alat

Seperangkat alat gelas, neraca analitik Mettler AE 100, magnet eksternal, spatula, krus, *Furnace Thermo Scientific*, pH meter Mettler Toledo, Oven (Fisher Scientific Model 655F), Ultrasonic (Branson 3210 dengan frekuensi 48 kHz; 220 volt), *hot plate stirrer* IKA C-MAG HS 4, *magnetic stirrer*, dan X-Ray Diffractometer (XRD) Shimadzu 6000.

Bahan

$\text{FeCl}_3.6\text{H}_2\text{O}$ (Merck), $\text{FeSO}_4.7\text{H}_2\text{O}$ (Merck), $\text{Na}_3\text{C}_6\text{H}_5.2\text{H}_2\text{O}$, NH_4OH 25%

(Merck), NaOH, HCl 37 %, metanol absolut (Merck), akuabides, TEOS 98% (Merck), dan TTIP 97% (Sigma Aldrich).

Prosedur Kerja

Sintesis magnetit (Fe_3O_4)

Pembuatan magnetit dilakukan dengan mereaksikan 5,4 gram $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ dengan 2,8 gram $FeSO_4 \cdot 7H_2O$. Campuran selanjutnya dilarutkan dengan akuabides dalam kondisi tanpa oksigen dan disonikasi. Selanjutnya menambahkan basa hingga pH larutan 11 dan terbentuk endapan. Endapan kemudian dicuci hingga pH netral (pH= 7) dan melarutkan dengan Natrium Sitrat 0,5 M sambil disonikasi. Endapan tersebut didiamkan selama 24 jam, setelah itu dipisahkan filtratnya dan dikeringkan pada temperatur 80° C.

Sintesis magnetit/silika (Fe_3O_4/SiO_2)

Pada tahap ini dilakukan dengan cara menambahkan Fe_3O_4 pada metanol absolut dan disonikasi. Penambahan TEOS sebanyak 2 mL sebagai prekursor silikon dioksida. Selanjutnya menambahkan akuabides dan NH_4OH 25%, lalu didiamkan selama 24 jam. Endapan kemudian dicuci hingga pH netral dengan metanol dan dikeringkan pada temperatur 80° C.

Sintesis magnetit/silika/titania ($Fe_3O_4/SiO_2/TiO_2$)

Material Fe_3O_4/SiO_2 didispersikan dalam metanol absolut dan disonikasi. Selanjutnya TTIP sebanyak 1 mL dan akuabides sebanyak 0,2 mL ditambahkan. Endapan dipisahkan dan dikeringkan pada temperatur 80° C. Endapan selanjutnya dikalsinasi pada temperatur 500° C selama 3 jam.

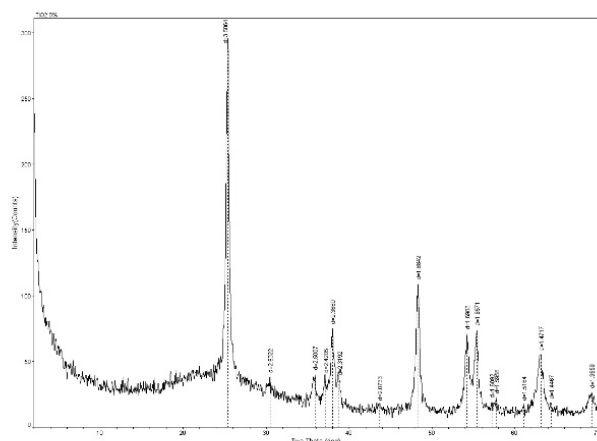
Penentuan struktur magnetit/silika/titania ($Fe_3O_4/SiO_2/TiO_2$)

Komposit yang telah berhasil disintesis kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) Shimadzu 6000, XRD digunakan untuk mengidentifikasi struktur kristal yang dihasilkan pada proses sintesis [13].

Hasil dan Pembahasan

Pada penelitian ini dilakukan sintesis nanokomposit $Fe_3O_4/SiO_2/TiO_2$ dengan metode sol-gel. Penelitian diawali dengan sintesis magnetit dengan mereaksikan $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ dan $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ sebagai prekursor dengan metode ko-precipitasi dan sonikasi. Selanjutnya melapisi magnetit dengan silika dengan metode sonikasi dengan mereaksikan TEOS dengan magnetit pada kondisi basa, dan selanjutnya melapisi dengan TiO_2 menggunakan metode sol-gel yang dilanjutkan dengan kalsinasi.

Analisis material pada penelitian ini dilakukan dengan *X-Ray Difractionmeter* (XRD). Tujuan analisis dengan XRD adalah untuk mengidentifikasi struktur dan kristalinitas suatu material berdasarkan pada puncak-puncak difraksi yang muncul pada difraktogram [13]. Penentuan fasa kristal hasil karakterisasi dengan XRD selanjutnya dicocokkan dengan *Joint Commite on Powder Diffraction Standard* (JCPDS) untuk mengetahui kristal yang dominan pada material hasil sintesis tersebut [14]. Hasil karakterisasi nanokomposit dengan XRD disajikan pada Gambar 1. berikut:



Gambar 1. Hasil Karakterisasi dengan XRD

Hasil analisis dengan XRD seperti yang ditampilkan pada Gambar 1. menunjukkan puncak difraktogram material $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ $2\theta(^{\circ})$ pada 25.38° , 35.881° , 38° , 38.797° , 48.26° , 54.22° , 55.4° , 63.119° , dan 69.24° . Puncak-puncak utama material $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ memiliki beberapa kesamaan dengan standar difraktogram TiO_2 . Data difraktogram tersebut mengindikasikan terbentuknya TiO_2 pada permukaan $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$. Berdasarkan hasil XRD, nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ telah berhasil disintesis. Hal ini sesuai dengan JCPDS#21-1272 yang mengindikasikan fasa TiO_2 dalam bentuk anatase kristalin [15]. Data ini membuktikan bahwa hasil modifikasi material magnetit dengan SiO_2 dan TiO_2 tidak menyebabkan terjadinya perubahan struktur. Akan tetapi, terdapat pergeseran sedikit di beberapa puncak yang menandakan terjadi penurunan kristalinitas dengan penambahan Fe_3O_4 dan SiO_2 pada material fotokatalis.

Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa

nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ dapat disintesis dengan metode sol gel dengan prekursor $\text{FeCl}_3.6\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeSO}_4.7\text{H}_2\text{O}$, TTIP, dan TEOS.

Hasil karakterisasi dengan X-Ray difractometer (XRD) menunjukkan telah berhasil terbentuk nanokomposit $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ sesuai dengan JCPDS#21-1272 pada puncak-puncak 2θ 25.38° , 35.881° , 38° , 38.797° , 48.26° , 54.22° , 55.4° , 63.119° , dan 69.24° .

Daftar Pustaka

1. Iris Groeneveld, Maria Kanelli, Freek Arie, Maarten R. van Bommel. Parameters that affect the photodegradation of dyes and pigments in solution and on substrate – An overview. *Dyes and Pigments*. 2023;210:1-14.
2. Irina Levchuk, Mika Sillanpää, Chantal Guillard, Damia Gregori, Denis Chateau, Stephane Parola. $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ porous composite thin films: Role of TiO_2 areal loading and modification with gold nanospheres on the photocatalytic activity. *Applied Surface Science*. 2016;383:367-374.
3. M.M. Mikhailo, S.A. Yuryev, G.E. Remnev, R.V. Sazonov, G.E. Kholodnaya, D.V. Ponomarev. Effect of temperature on radiation resistance of TiO_2 powders during heating and modification by SiO_2 nanoparticles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. 2014;2014:336:96-101.
4. Jaegu Park, Su Shiung Lam, Young Kwon Park, Byung Joo Kim, Kay Hyeok An, Sang Chul Jung. Fabrication of Ni/TiO_2 visible light responsive photocatalyst for

- decomposition of oxytetracycline. *Environmental Research*. 2023;216:1-8.
5. Akira Kimoto, Shogo Shimada. A proposal of process sensing technique at photocatalytic degradation. *Sensors and Actuators A: Physical*. 2012;175:150-154.
6. Sujubili Narzary, K. Alamelu, V. Raja, B.M. Jaffar Ali. Visible light active, magnetically retrievable $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{g-C}_3\text{N}_4/\text{TiO}_2$ nanocomposite as efficient photocatalyst for removal of dye pollutants. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 2020;8:1-9.
7. Rivaldo Marsel Tumbelaka, Nurul Imani Istiqomah, Takeshi Kato, Daiki Oshima, Edi Suharyadi. High reusability of green-synthesized $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{TiO}_2$ photocatalyst nanoparticles for efficient degradation of methylene blue dye. *Materials Today Communications*. 2022;33:1-15.
8. Aadil Nabi Chishti, Zhiyuan Ma, Yi Liu, Ming Chen, Jagadis Gautam, Fang Guo, Lubin Ni, Guowang Diao. Synthesis of highly efficient and magnetically separable $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{C-TiO}_2$ -Ag catalyst for the reduction of organic dyes and 4-nitrophenol. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2021;631:1-13.
9. Amir Sheikhmohammadi, Esrafil Asgari, Heshmatollah Nourmoradi, Mehran Mohammadian Fazli, Mojtaba Yeganeh. Ultrasound-assisted decomposition of metronidazole by synthesized $\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$ nanocatalyst: Influencing factors and mechanisms. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 2021;9:1-14.
10. A. Rosales, V. Guti  rrez, Janet Ocampo-Hern  andez, Martha L. Jim  enez-Gonz  lez, Iliana E. Medina-Ram  rez, L. Ortiz-Frade, K. Esquivel. Hydrophobic agents and pH modification as comparative chemical effect on the hydrophobic and photocatalytic properties in $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$ coating. *Applied Surface Science*. 2022;593:1-10.
11. WANG Liyan, WANG Hongxia, WANG Aijie, LIU Min. Surface Modification of a Magnetic SiO_2 Support and Immobilization of a Nano- TiO_2 Photocatalyst on It. *Chinese Journal of Catalysis*. 2009;30: 939-944.
12. T.A. Esquivel-Castro, G. Robledo-Trujillo, J. Oliva, H.C. Rosu, V. Rodr  guez-Gonz  lez. A functional $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$ mesoporous assembly designed for the controlled release of carvacrol. *Applied Surface Science Advances*. 2023;13:1-10.
13. Yanan Sun, Xiutong Wang, Fanglin Du, Jianmin Niu, Youbo Nan, Jiayan Pu, Yanliang Huang, Baorong Hou. Fabrication of Z-scheme $\text{MnFe}_2\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ composite used for 304 stainless steel photocathodic protection. *Journal of Electroanalytical Chemistry*. 2022;923:1-11.
14. Anna Maria Venezia, Valeria La Parola, Leonarda F. Liotta, Giuseppe Pantaleo, Matteo Lualdi, Magali Boutonnet, Sven J  r  s. Co/SiO_2 catalysts for Fischer-Tropsch synthesis; effect of Co loading and support modification by TiO_2 . *Catalysis Today*. 2012;197:18-23.
15. M.M. Abutalib, Haifa Mohammed Alghamdi, A. Rajeh, Omer Nur, A.M. Hezma, Mohammed A. Mannaa.

Fe₃O₄/Co₃O₄@TiO₂ S-scheme photocatalyst for degradation of organic pollutants and H₂ production under natural sunlight. *Journal of Material Research and Technology*. 2022;20:1043-1056.