



## Nanomagnetit Terlapis Silika Sebagai Adsorben Ion Ni(II)

Muhammad Akbar Ilyas Jaya Kusuma, Irma Kartika Kusumaningrum\*, Restu Hidayat

Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Malang, Malang, Indonesia, 65145

**INFO ARTIKEL****ABSTRAK****Riwayat Artikel**

Diterima 10 September 2023

Direvisi 29 Agustus 2024

Tersedia online 31 Oktober 2024

\* Email (penulis korespondensi):  
irma.kartika.fmipa@um.ac.id

DOI: 10.18860/al.v12i2.23508

Magnetic Solid Phase Extraction has been developed as a separation method using magnetic adsorbents. The adsorbent consists of a magnetic core covered with a coating. This research synthesizes Ethylenediaminetetraacetic Acid (EDTA) functionalized silica-coated nanomagnetite as a nickel(II) ion adsorbent. The process of synthesis and characterization of adsorbents in this research includes 1) Extraction of silica from quartz sand, 2) Synthesis of nanomagnetite using the coprecipitation method, 3) Coating of nanomagnetite using extracted silica to produce  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ , 4) Functionalization of silica-coated nanomagnetite with EDTA. The extraction and synthesis results obtained were then characterized using X-Ray Fluorescence (XRF), Fourier Transform Infra-Red (FTIR), X-Ray Powder Diffraction (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), and Vibrating Sample Magnetometer (VSM) instruments. The maximum adsorption ability of the adsorbent to bind nickel(II) ions is determined from the largest mass percentage of nickel(II) ions absorbed per gram of adsorbent in the test of variations in the percentage of nickel(II) ions against variations in the mass of the adsorbent.

Keywords: Nanomagnetite, Silica, EDTA, Nickel

Ekstraksi Fasa Padat Magnetik telah dikembangkan sebagai suatu metode pemisahan dengan menggunakan adsorben bersifat magnetik. Adsorben terdiri atas inti magnetis yang disalut dengan pelapis. Penelitian ini mensintesis nanomagnetit terlapis silika terfungsionalisasi Ethylenediaminetetraacetic Acid (EDTA) sebagai adsorben ion nikel(II). Proses sintesis dan karakterisasi adsorben dalam penelitian ini meliputi 1) Ekstraksi silika dari pasir kuarsa, 2) Sintesis nanomagnetit menggunakan metode kopresipitasi, 3) Pelapisan nanomagnetit menggunakan silika hasil ekstraksi untuk menghasilkan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ , 4) Fungsionalisasi nanomagnetit terlapis silika dengan EDTA. Hasil ekstraksi dan sintesis yang diperoleh kemudian dikarakterisasi menggunakan instrumen X-Ray Fluorescence (XRF), Fourier Transform Infra-Red (FTIR), X-Ray Powder Diffraction (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), serta Vibrating Sample Magnetometer (VSM). Kemampuan adsorpsi maksimal adsorben untuk mengikat ion nikel(II) ditentukan dari persentase massa ion nikel(II) terbesar yang diserap per gram adsorben pada uji variasi persentase ion nikel(II) terhadap variasi massa adsorben.

Kata Kunci: Nanomagnetit, Silika, EDTA, Nikel

## 1. Pendahuluan

Metode ekstraksi fasa padat magnetik merupakan salah satu alternatif metode pemisahan yang dapat digunakan untuk memisahkan ion logam dari matriks sampel. Pengikatan ion logam sering dilakukan pada prosedur pengurangan kadar ion logam atau proses untuk mendapatkan kembali ion logam yang berharga. Ekstraksi fasa padat magnetik adalah metode pemisahan menggunakan adsorben yang bersifat magnetik. Adsorben ekstraksi fasa padat magnetik berupa bahan magnetik yang disalut dengan pelapis yang dimodifikasi untuk memiliki fungsi tertentu atau komposit material magnetik dan bahan komposit yang lain. Nanomagnetit terlapis telah digunakan oleh Adhim M. pada tahun 2018 sebagai adsorben fasa padat magnetik [1].

Nanomagnetit ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) merupakan partikel bersifat magnetik yang berupa serbuk berwarna hitam, tidak beracun [1]. Nanomagnetit memiliki sifat magnetik, partikel ini dapat dengan mudah dipisahkan dari matriks sampel dengan menggunakan magnet. Hal ini membuat proses pemisahan adsorben dari matriks sampel menjadi lebih mudah dan efisien. Dalam dunia industri, adsorpsi nanomagnetit terlapis digunakan dalam proses pemurnian air dan air limbah, pemurnian minyak dan gas, dan pemurnian produk bioteknologi. Pelapisan nanomagnetit juga dapat mengatasi permasalahan mudahnya nanomagnetit teroksidasi dan kecenderungan membentuk agregat besar, yang menurunkan daya magnetnya [2].

Salah satu pelapis yang banyak digunakan untuk melapis nanomagnetit adalah silika. Pelapisan menggunakan silika menutup ikatan hidroksil pada permukaan nanomagnetit sehingga tarikan polar antar partikel magnetit berkurang dan membuat magnetit tidak mudah larut dalam kondisi asam [3]. Penggunaan silika produk industri sebagai bahan pelapis berpotensi menyebabkan biaya produksi adsorben menjadi tinggi apabila diproduksi secara massal dan ketersediaannya tidak selalu tersedia. Oleh karenanya, silika yang diperoleh dari pasir kuarsa diharapkan dapat mengurangi biaya produksi karena didapat dari sumber alami yang mudah diperoleh dan dapat diperoleh secara massal. Ngatijo N. pada tahun 2020 telah mengembangkan metode untuk menambahkan sifat fungsional pada permukaan nanomagnetit dengan mengikat pembentuk kompleks yang dapat mengikat ion logam [3]. Pengikatan dicapai dengan mengatur tingkat keasaman, karena stabilitas kompleks dipengaruhi oleh keasaman [4].

Nikel merupakan salah satu logam berat yang sering digunakan dalam berbagai industri, antara lain pelapisan logam, pembuatan baterai, dan lain-lain. Meskipun mempunyai nilai ekonomi yang tinggi, nikel juga dapat menjadi pencemar lingkungan yang berbahaya [5]. Oleh karena itu, teknologi untuk menurunkan kandungan nikel dalam limbah, memanfaatkan limbah nikel dalam proses produksi, dan menganalisis kandungan nikel terus dikembangkan. Salah satu topik yang menarik untuk dikembangkan adalah metode adsorpsi selektif ion nikel.

Penentuan kadar rendah ion logam, seringkali menemui kendala pada penggunaan instrumen pengukuran tertentu, misalnya Spektrofotometri Serapan Atom (SSA), yang banyak digunakan di laboratorium uji, karena itu metode prekonsentrasi diperlukan untuk meningkatkan konsentrasi sampel [6]. Proses prekonsentrasi salah satunya dapat dilakukan melalui metode adsorpsi dan desorpsi. Beberapa peneliti telah melakukan adsorpsi ion logam menggunakan adsorben magnetik [7]. Paduan biopolimer, silika, dan berbagai bahan matriks pengikat telah digunakan dalam komposit magnetik sebagai matriks untuk menarik ion logam secara simultan [8], pada kasus lain pengikatan bertarget terhadap ion logam juga diperlukan [9], karena itu metode pengikatan bertarget ion logam perlu dikembangkan. Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis adsorben nanomagnetit lapis silika terfungsionalisasi EDTA sebagai adsorben ion logam nikel(II) dan mengetahui kapasitas adsorpsinya sebagai adsorben ion nikel(II).

## 2. Bahan dan Metode

### 2.1. Bahan

Bahan yang digunakan pada penelitian ini pa dari *merck* yang meliputi  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ , ammonium hidroksida ( $\text{NH}_4\text{OH}$ ), etanol ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ , 96%), asam asetat glasial ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ ), *tetraethyl orthosilicate* (TEOS), *3-aminopropyl triethoxysilane* (APTES), *ethylenediamine tetraacetic acid* (EDTA), asam klorida 37% dan pasir kuarsa.

## 2.2. Metode

### 2.2.1 Ekstraksi Silika dari Pasir Kuarsa

Pasir kuarsa yang telah diambil dicuci dengan akuades hingga bersih lalu dikeringkan dalam oven selama 12 jam pada suhu 60°C. Pasir yang telah kering kemudian direndam ke dalam larutan HCl 2M selama 12 jam. Selanjutnya dicuci pasir hingga netral dan dikeringkan pada oven bersuhu 60°C selama 12 jam. Kemudian di panaskan dalam tabung refluks pasir kuarsa 15 gram tersebut dengan larutan NaOH 3 M selama 4 jam pada suhu 90°C. Selanjutnya disaring hasil refluks dan filtrat ditambahkan larutan HCl 6 M hingga terbentuk pH larutan netral, lalu didiamkan selama 18 jam agar gel terbentuk. (Dimodifikasi dari penelitian Ishmah dkk., 2020 [10]).

### 2.2.2 Sintesis Nanomagnetit

FeCl<sub>3</sub>.6H<sub>2</sub>O dan FeSO<sub>4</sub>.6H<sub>2</sub>O ditimbang masing-masing sebanyak 3,372 gram dan 1,736 gram. Keduanya dilarutkan masing-masing ke dalam 50 mL akuades. Selanjutnya dicampur kedua larutan dan diaduk serta dipanaskan hingga suhu mencapai 90°C. Kemudian dimasukkan larutan NH<sub>4</sub>OH sambil diaduk dan dipanaskan pada suhu 90°C selama 30 menit. Selanjutnya larutan disaring, lalu endapannya dicuci menggunakan akuades hingga netral. Endapan yang diperoleh kemudian dikeringkan dalam oven bersuhu 60°C selama 3-4 jam. Selanjutnya dihaluskan padatan yang diperoleh menggunakan mortar. (Dimodifikasi dari penelitian Bukit dkk., 2015 [11]).

### 2.2.3 Sintesis Nanomagnetit Terlapis Silika Pasir dan Sintesis Nanomagnetit Terlapis TEOS

Sebanyak 1 gram nanomagnetit (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) dimasukkan ke dalam 35 mL akuades lalu ditambahkan 200 mL alkohol 96%, 15 mL larutan NH<sub>4</sub>OH, dan 3 mL gel silika. Larutan distirer selama 2 jam, kemudian disonifikasi selama 10 menit. Selanjutnya endapan dipisahkan menggunakan magnet eksternal dan proses pelapisan diulang hingga 3 kali. Pada pelapisan yang ketiga, endapan yang diperoleh dinetralkan menggunakan alkohol 96% hingga terbentuk pH 7. Selanjutnya larutan dimasukkan ke dalam *waterbath* selama 2 jam dengan suhu 60°C. Endapan selanjutnya disaring dan dioven dengan suhu 60°C selama 4 jam.

Nanomagnetit terlapis TEOS disintesis menggunakan metode yang sama, hanya perlu mengganti gel silika dengan TEOS. (Dimodifikasi dari penelitian Salman dkk., 2021 [12]).

### 2.2.4 Sintesis Nanomagnetit Terlapis Silika Pasir Terfungsionalisasi EDTA dan Sintesis Nanomagnetit Terlapis TEOS Terfungsionalisasi EDTA

Sebanyak 200 mL alkohol 96% dicampurkan dengan akuades sebanyak 35 mL (alkohol/akuades dengan perbandingan 85:15). Keasaman larutan diatur pada pH 4,5 menggunakan larutan HCl 1 M. Selanjutnya 1 gram nanomagnetit terlapis silika (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>) dimasukkan ke dalam larutan dan disonifikasi selama 10 menit. 7 mL APTES ditambahkan ke dalam larutan dan ditambahkan sedikit asam asetat. Larutan direfluks selama 4 jam pada suhu 60°C. Selanjutnya endapan dipisahkan menggunakan magnet eksternal, kemudian dicuci endapan menggunakan air dan dilanjutkan menggunakan aseton. Selanjutnya direfluks endapan dengan larutan EDTA 0,3 M sebanyak 80 mL pada suhu 60°C selama 2 jam. Endapan yang diperoleh disaring dan dicuci menggunakan akuades hingga endapan netral. Selanjutnya endapan dikeringkan pada suhu 50°C selama 1 jam. (Dimodifikasi dari penelitian Salman dkk., 2021 [12]).

### 2.2.5 Penentuan Tingkat Keasaman Kompleks [Ni(EDTA)]<sup>2-</sup>

Sebanyak 20 mL larutan Ni(II) 5000 ppm diatur tingkat keasaman masing-masing pada pH 3, 5, 6, 7, dan 9. Selanjutnya ditambahkan larutan EDTA 1M pada masing-masing larutan yang telah diatur tingkat keasamannya. Larutan kemudian diuji menggunakan spektrofotometer UV-Vis untuk mengetahui nilai absorbansi maksimum pada masing-masing pH larutan.

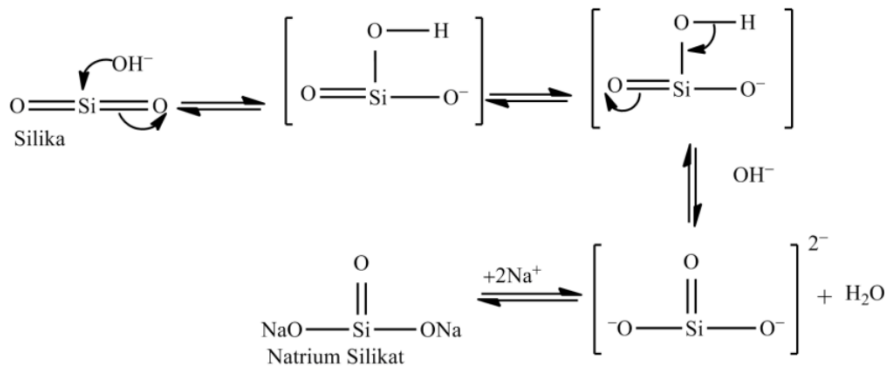
### 2.2.6 Penentuan Kapasitas Adsorpsi Adsorben Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-EDTA

Adsorben Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-EDTA dimasukkan sebanyak 0,08; 0,1; 0,2; 0,3; dan 0,6 gram masing-masing ke dalam 20 mL larutan Ni(II) 2,5 ppm yang telah diatur keasamannya pada pH 5. Campuran kemudian digoyang menggunakan tangan secara perlahan dalam waktu 5 menit. Erlenmeyer yang berisi campuran larutan Ni(II) dan adsorben diletakkan di atas magnet eksternal dan ditunggu hingga 12 jam. Setelah itu, adsorben dipisahkan dengan larutan menggunakan magnet eksternal. Selanjutnya 20 mL larutan Ni(II) 2,5 ppm yang telah diatur keasamannya pada pH 5 digunakan sebagai larutan uji sebelum adsorpsi. Kedua larutan sebelum dan sesudah adsorpsi diuji menggunakan AAS.

## 3. Hasil dan Pembahasan

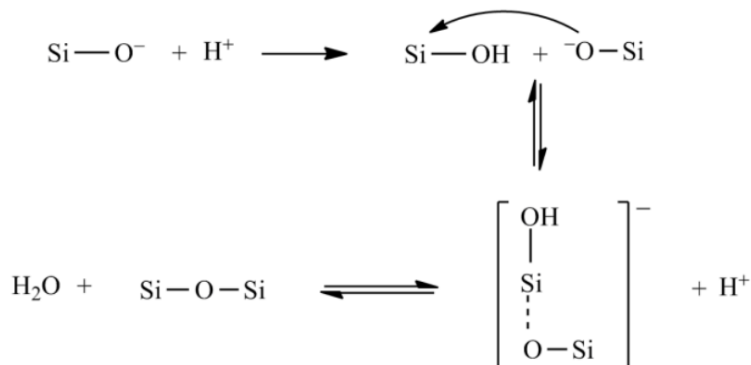
### 3.1. Ekstraksi Silika dari Pasir Kuarsa dan Karakterisasinya

Pasir kuarsa yang digunakan berasal dari daerah Kabupaten Ketapang, Kalimantan Barat. Pasir kuarsa dicuci menggunakan akuades dan dikeringkan pada suhu 60°C selama 12 jam. Selanjutnya pasir direndam dalam HCl selama 12 jam dengan tujuan untuk menghilangkan pengotor berupa ion-ion logam lain dalam pasir. Pasir kemudian dikeringkan dalam oven bersuhu 60°C selama 12 jam. Pasir yang telah dicuci dan dikeringkan kemudian direfluks menggunakan larutan NaOH dengan tujuan agar silika larut menjadi natrium silikat (NaSiO<sub>3</sub>).



**Gambar 1.** Reaksi Pembentukan Natrium Silikat [13]

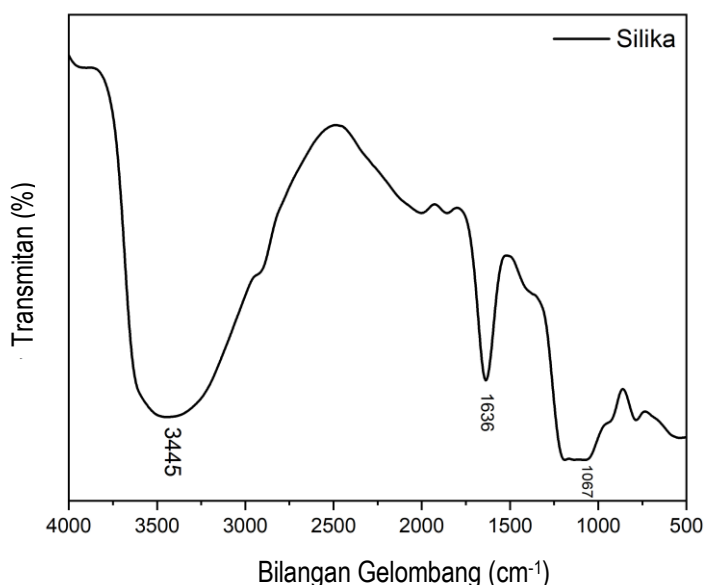
NaOH akan terdisosiasi menjadi ion Na<sup>+</sup> dan OH<sup>-</sup>. Ion OH<sup>-</sup> yang merupakan nukleofil akan menyerang muatan elektropositif dari atom Si pada SiO<sub>2</sub> sehingga atom O yang memiliki muatan elektronegatif secara spontan akan memutuskan ikatan rangkapnya dan terbentuk intermediet SiO<sub>2</sub>OH<sup>-</sup>. Sementara itu ion H<sup>+</sup> akan terlepas sehingga atom O dari ion OH<sup>-</sup> akan membentuk ikatan rangkap dengan atom Si yang mengakibatkan atom O yang lain mengalami pemutusan ikatan rangkap. Ion H<sup>+</sup> yang terlepas ini akan berikatan dengan ion OH<sup>-</sup> lain dari disosiasi NaOH sehingga terbentuk H<sub>2</sub>O. Selanjutnya ion SiO<sub>3</sub><sup>2-</sup> dengan muatan negatif akan membentuk ikatan dengan ion Na<sup>+</sup> menjadi natrium silikat (NaSiO<sub>3</sub>) [13].



**Gambar 2.** Reaksi Pembentukan Silika Gel [13]

Penambahan larutan asam ke dalam larutan natrium silikat ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) yang dihasilkan pada tahap sebelumnya menyebabkan reaksi kondensasi terhadap ion silikat sehingga akan terbentuk gel silika. Pada penelitian ini asam yang digunakan adalah asam klorida (HCl).

Setelah diperoleh filtrat natrium silikat ( $\text{NaSiO}_3$ ) kemudian ditambahkan dengan larutan HCl 6M hingga pH filtrat menjadi netral, selanjutnya didiamkan selama 18 jam agar gel terbentuk seluruhnya. Penambahan HCl menyebabkan gugus siloksi ( $\text{Si-O}^-$ ) mengalami proses protonasi menjadi silanol ( $\text{Si-OH}$ ). Gugus silanol ( $\text{Si-OH}$ ) akan berikatan dengan gugus siloksi ( $\text{Si-O}^-$ ) selanjutnya gugus  $\text{OH}^-$  akan terputus dan berikatan dengan ion  $\text{H}^+$  membentuk molekul  $\text{H}_2\text{O}$  menyisakan gugus ( $\text{Si-O-Si}$ ) [13]. Selanjutnya gel yang diperoleh disaring, dikeringkan, dan dihaluskan. Serbuk silika yang diperoleh kemudian dikarakterisasi menggunakan instrumen FTIR dan XRF. Berikut adalah spektra FTIR silika hasil ekstraksi.



**Gambar 3.** Spektra FTIR Silika

Pada gambar di atas tampak bahwa bilangan gelombang  $1067\text{ cm}^{-1}$  berkorelasi dengan vibrasi Si-O [14], kemudian vibrasi tekuk gugus -OH yang berasal dari gugus silanol ( $\text{Si-OH}$ ) muncul pada bilangan gelombang  $1636\text{ cm}^{-1}$  [14]. Kedua puncak ini menunjukkan berhasilnya proses ekstraksi silika. Sementara itu keberadaan gugus -OH diperkuat lagi dengan munculnya bilangan gelombang  $3445\text{ cm}^{-1}$  yang berkorelasi dengan gugus -OH dari gugus silanol ( $\text{Si-OH}$ ) [14]. Konfirmasi silika hasil ekstraksi yang dipaparkan oleh peneliti lain menyebutkan bahwa terdapat puncak pada bilangan gelombang  $1058,6\text{ cm}^{-1}$  yang berkorelasi dengan vibrasi Si-O-Si, pada bilangan gelombang  $1640,0\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya vibrasi tekuk gugus O-H, dan puncak gelombang  $3421,7\text{ cm}^{-1}$  yang mengindikasikan adanya vibrasi ulur asimetris O-H dari Si-OH [15].

Selanjutnya material yang terdapat dalam pasir Ketapang dikarakterisasi dengan instrumen XRF. Kandungan material pada pasir ketapang terdapat pada Tabel 1.

**Tabel 1.** Kandungan material sebelum ekstraksi

Oksida	Komposisi (%)
$\text{SiO}_2$	98,9
$\text{CaO}$	0,43
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	0,31

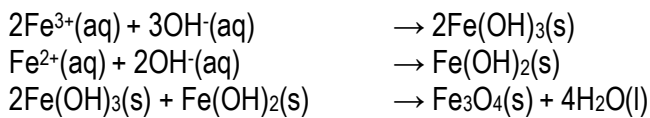
**Tabel 2.** Kandungan material setelah dilakukan ekstraksi

Oksida	Komposisi (%)
SiO <sub>2</sub>	99,2
CaO	0,32
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,23

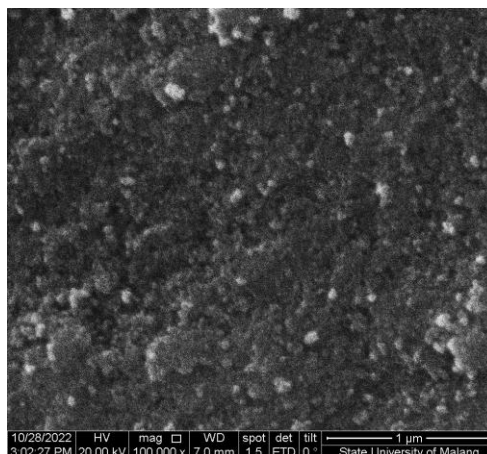
Kandungan material menunjukkan perbedaan pada sebelum dan sesudah proses ekstraksi. Tampak bahwa terdapat kenaikan komposisi oksida SiO<sub>2</sub> yang semula 98,9% ke 99,2%. Kenaikan oksida SiO<sub>2</sub> tampak tidak terlalu signifikan sebab pasir kuarsa di daerah Ketapang telah memiliki komposisi oksida SiO<sub>2</sub> yang cukup besar yakni sekitar 98% [16]. Selain itu kandungan oksida-oksida lain seperti CaO yang semula 0,43% menurun menjadi 0,32% dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang semula 0,31% menurun menjadi 0,23%.

### 3.2. Sintesis Nanomagnetit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan Karakterisasinya

Proses pembuatan nanomagnetit dilakukan dengan teknik kopresipitasi. Larutan FeCl<sub>3</sub> 0,1 M dan larutan FeSO<sub>4</sub> 0,1 M dicampur kemudian ditambahkan larutan NH<sub>4</sub>OH. Berikut ini merupakan persamaan reaksi yang terjadi pada proses sintesis nanomagnetit [12]:

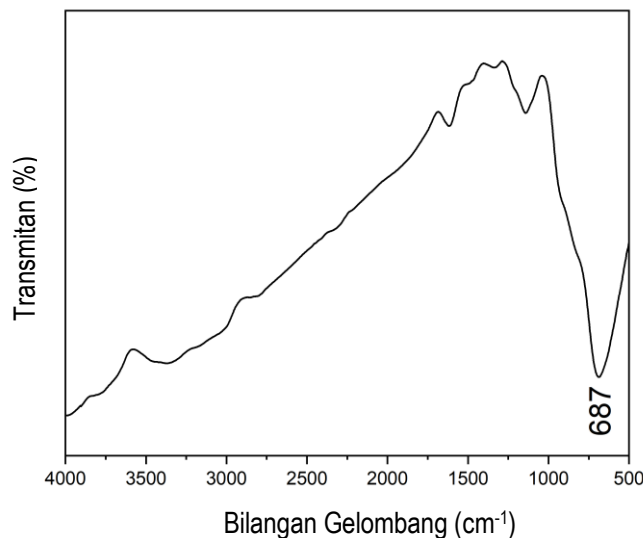


Adapun hasil perolehan sintesis nanomagnetit berupa serbuk berwarna hitam bersifat feromagnetik seperti tampak pada Gambar 4. Serbuk ini kemudian dikarakterisasi menggunakan SEM dan FTIR.

**Gambar 4.** Hasil Sintesis Nanomagnetit Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>**Gambar 5.** Fotograf SEM nanopartikel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Instrumen SEM (*Scanning Electron Microscopy*) digunakan untuk mengetahui penampakan permukaan nanomagnetit. Terlihat bahwa pada Gambar 5 terdapat partikel menyerupai bola-bola kecil yang berinteraksi satu sama lain. Interaksi berupa daya tarik antarpartikel magnetik inilah yang menyebabkan terlihat

terbentuknya gumpalan yang menjadikan ukuran partikel tampak lebih besar yang nantinya akan berpengaruh pada sifat kemagnetannya. Adapun ukuran rata-rata partikel yang diperoleh melalui pengolahan statistik data SEM dengan program Image J berkisar antara 37,88 nm – 46,08 nm yang mengindikasikan partikel berukuran nanometer. Sementara itu pada Gambar 6, tampak puncak 687  $\text{cm}^{-1}$  yang berkorelasi dengan puncak khas gugus Fe-O pada nanomagnetit [17].



**Gambar 6.** Spektra FTIR nanomagnetit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$

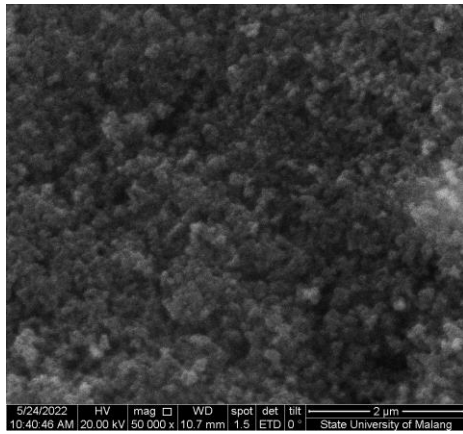
### 3.3. Sintesis Nanomagnetit $\text{Fe}_3\text{O}_4@/\text{SiO}_2$ -EDTA dan Karakterisasinya

Silika digunakan sebagai pelapis, yang pada permukaannya terdapat gugus silanol (-Si-OH) yang membuat silika bersifat hidrofilik dan memberikan permukaan yang kasar dan tahan terhadap oksidasi. Silika yang digunakan pada pelapisan ini diekstrak dari pasir kuarsa Ketapang, Kalimantan Barat. Komposisi silika pada kuarsa Ketapang mencapai 98,6% - 98,8% [16]. Berikut adalah tabel komposisi pasir kuarsa Ketapang:

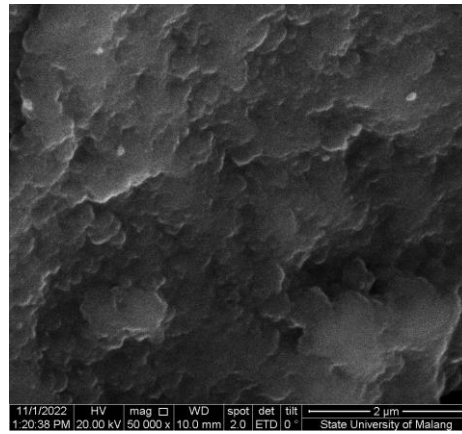
**Tabel 3.** Komposisi pasir Kuarsa Ketapang

Jenis Unsur	Komposisi (%)
$\text{SiO}_2$	98,9
$\text{K}_2\text{O}$	0,14
$\text{CaO}$	0,43
$\text{TiO}_2$	0,16
$\text{Cr}_2\text{O}_3$	0,032
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	0,310
$\text{NiO}$	0,016
$\text{CuO}$	0,034

Hasil karakterisasi SEM nanomagnetit terlapis silika ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@/\text{SiO}_2$ ) menunjukkan bahwa pada Gambar 7, nanomagnetit terlapis silika TEOS memiliki ukuran partikel berkisar 73 nm. Sementara itu pada Gambar 8, nanomagnetit terlapis silika pasir memiliki ukuran partikel yang lebih besar yakni 219 nm. Baik nanomagnetit terlapis silika pasir dan TEOS memiliki ukuran partikel yang lebih besar daripada partikel nanomagnetit tanpa pelapis sehingga dapat dikonfirmasi bahwa pelapisan berhasil dilakukan karena terbentuknya lapisan luar yang memperbesar ukuran nanomagnetit dan melindungi inti magnet.

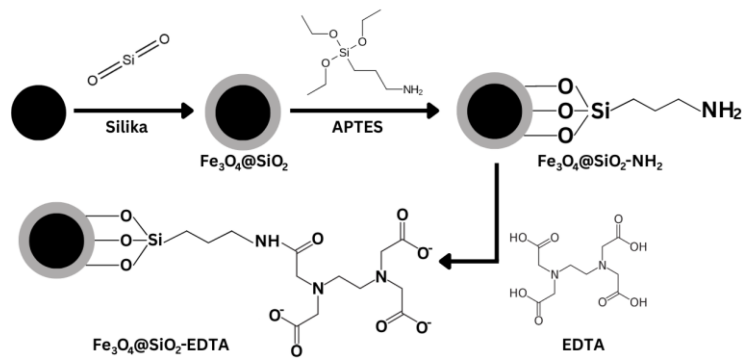


**Gambar 7.** Struktur morfologi  $\text{Fe}_3\text{O}_4@SiO_2$  (TEOS)



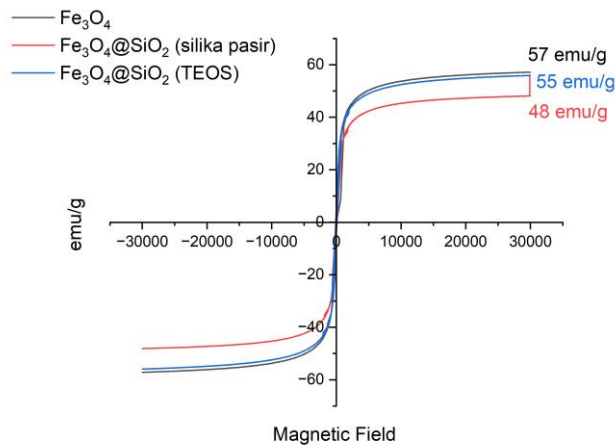
**Gambar 8.** Struktur morfologi  $\text{Fe}_3\text{O}_4@SiO_2$  (silika pasir)

Nanomagnetit terlapis silika selanjutnya difungsionalisasi menggunakan *3-Aminopropyltriethoxysilane* (APTES). Fungsi penambahan APTES adalah sebagai pengikat EDTA (*Ethylenediaminetetraacetic acid*) yang nantinya dapat meningkatkan kemampuan silika dalam mengikat ion-ion logam pada pH tertentu. Berikut adalah mekanisme reaksi yang terjadi.



**Gambar 9.** Reaksi fungsionalisasi nanomagnetit  $\text{Fe}_3\text{O}_4@SiO_2$  [12]

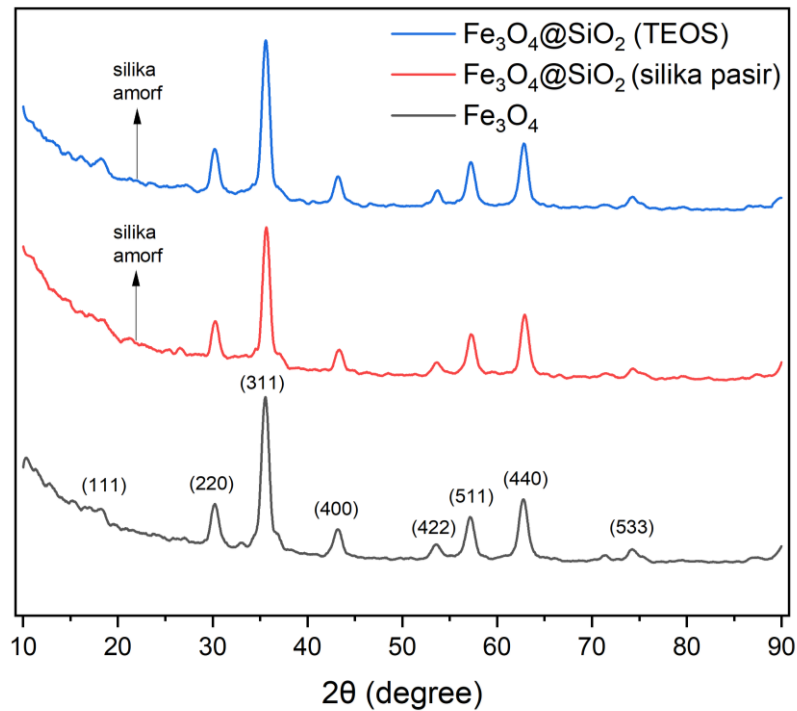
Hasil sintesis selanjutnya dikarakterisasi untuk menganalisis sifat magnet menggunakan instrumen VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*). Data yang diperoleh berupa besaran sifat magnetik yang diakibatkan oleh perubahan medan magnet luar yang digambarkan dalam kurva.



**Gambar 10.** Kurva kekuatan magnet  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@SiO_2$



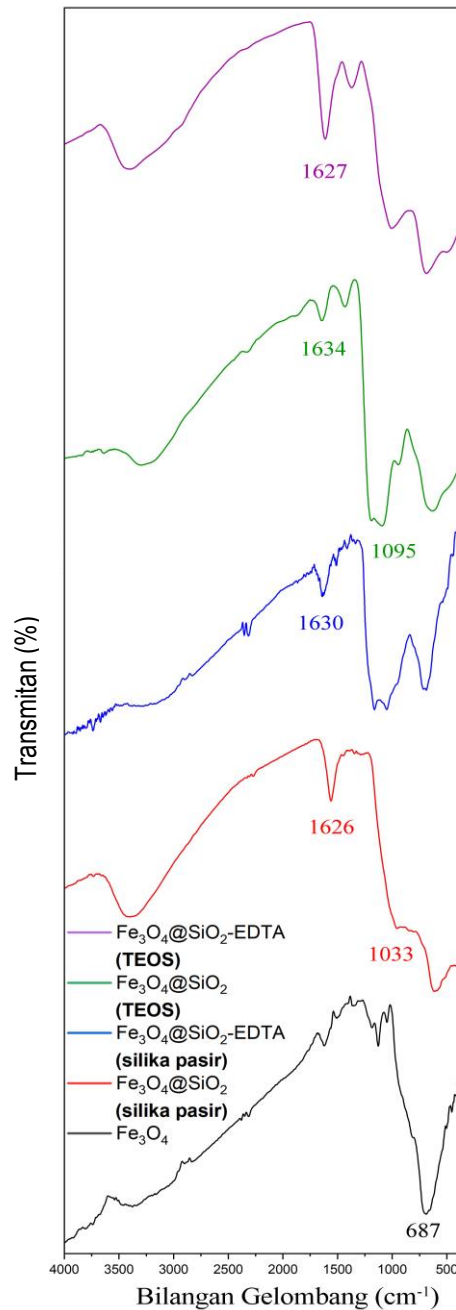
Melalui data VSM pada Gambar 10, dapat diketahui bahwa setelah dilakukan pelapisan silika pada nanomagnetit, nilai kemagnetan mengalami pengurangan yakni pada  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebesar 57 emu/g, sementara pada  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  (TEOS) sebesar 55 emu/g dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  (silika pasir) sebesar 48 emu/g. Meskipun mengalami pengurangan, pemisahan menggunakan magnet eksternal tetap dapat dilakukan.



**Gambar 11.** Difraktogram XRD  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$

Selanjutnya nanomagnetit  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  dikarakterisasi menggunakan instrumen XRD dengan mengacu pada data JCPDS (*Joint Committee for Powder Diffraction Standard*) bahwa pada pengukuran difraksi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  pada  $2\theta$  memiliki puncak pada  $18,23^\circ$ ,  $30,24^\circ$ ,  $35,57^\circ$ ,  $43,19^\circ$ ,  $53,58^\circ$ ,  $57,14^\circ$ ,  $62,77^\circ$ , dan  $74,23^\circ$ . Puncak-puncak ini identik dengan difraksi  $[1\ 1\ 1]$ ,  $[2\ 2\ 0]$ ,  $[3\ 1\ 1]$ ,  $[4\ 0\ 0]$ ,  $[4\ 2\ 2]$ ,  $[5\ 1\ 1]$ ,  $[4\ 4\ 0]$ , serta  $[5\ 3\ 3]$  [18]. Selanjutnya dapat diamati munculnya puncak signifikan pada  $23^\circ$  yang teridentifikasi merupakan silika amorf yang menunjukkan modifikasi permukaan berhasil dilakukan [19].

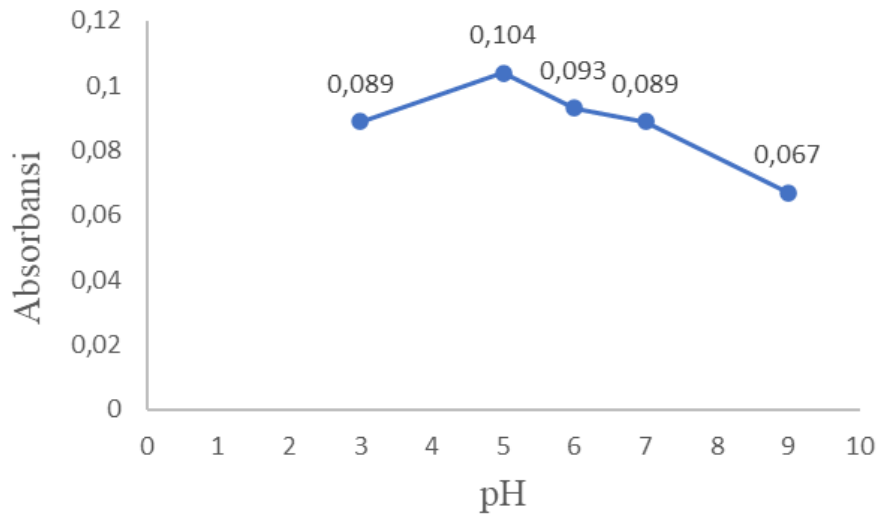
Analisis gugus fungsi yang terdapat pada nanomagnetit (Gambar 12) dilakukan melalui analisis spektrum FTIR (*Fourier Transform Infra-Red Spectroscopy*) dari nanomagnetit ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), nanomagnetit terlapis silika ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ ), dan nanomagnetit terlapis silika terfungsionalisasi EDTA ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA}$ ). Puncak serapan  $687\text{ cm}^{-1}$  berkorelasi dengan ikatan Fe-O pada nanomagnetit [20]. Pada spektra  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  silika pasir dan TEOS terlihat puncak serapan berturut-turut  $1033\text{ cm}^{-1}$  dan  $1095\text{ cm}^{-1}$  yang berkorelasi dengan vibrasi ulur gugus Si-O [12], [14]. Puncak serapan  $1626\text{ cm}^{-1}$  pada spektra  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  berkorelasi dengan gugus silanol (Si-OH) [17]. Hal ini menunjukkan bahwa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  telah berhasil dilapis menggunakan silika. Pada spektra  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA}$  silika pasir dan TEOS puncak serapan berturut-turut  $1630\text{ cm}^{-1}$  dan  $1627\text{ cm}^{-1}$  berkorelasi dengan ikatan C=O pada gugus karboksilat yang menandakan EDTA telah berikatan dengan permukaan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  [12], [21].



**Gambar 12.** Spektra FTIR

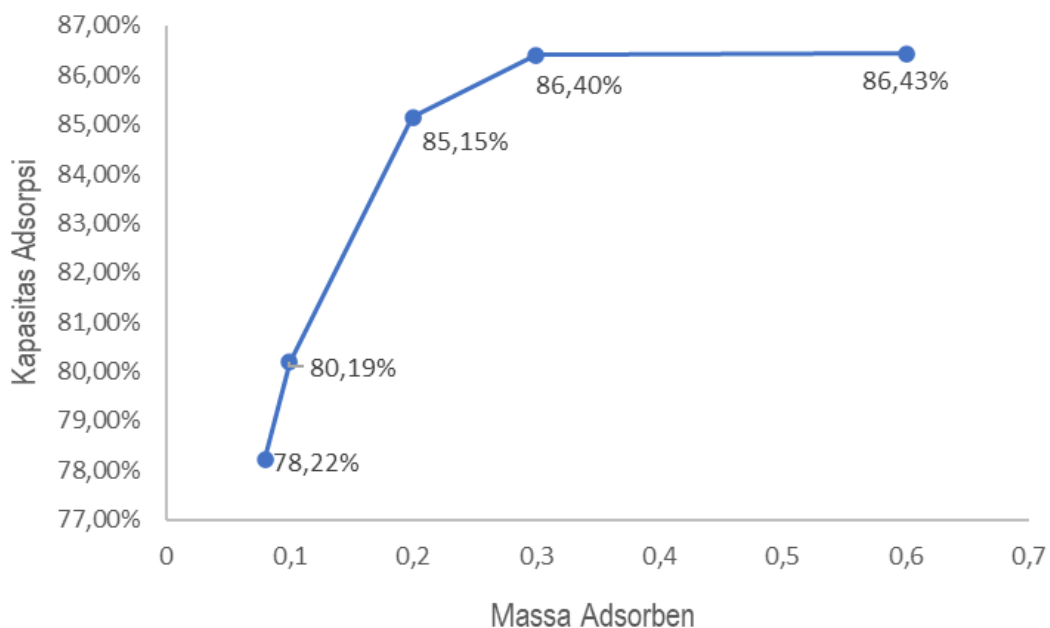
### 3.4. Uji Kemampuan Adsorpsi Nanomagnetit Terlapis Silika dengan Fungsionalisasi EDTA Sebagai Adsorben Nikel(II)

Pembentukan senyawa kompleks sangat dipengaruhi oleh pH, tak terkecuali kompleks Ni-EDTA. Pembentukan senyawa kompleks  $[\text{Ni}(\text{EDTA})]^{2-}$  dapat terjadi secara optimum pada pH 5 [22]. Untuk menguji apakah senyawa kompleks  $[\text{Ni}(\text{EDTA})]^{2-}$  benar terbentuk secara maksimum pada pH 5, dilakukan pengujian spektrofotometri. Berikut adalah data hasil pengamatan pH optimum absorbansi kompleks Ni(II) dengan EDTA.



**Gambar 13.** Grafik absorbansi kompleks  $[\text{Ni}(\text{EDTA})]^{2-}$

Setelah diketahui nilai penyerapan maksimum pada pH 5, dilakukan proses adsorpsi sampel yang mengandung 2,5 ppm larutan Ni(II). Proses adsorpsi dilakukan dengan memvariasikan massa adsorben  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA TEOS}$ . Berikut adalah data adsorpsi yang diperoleh.



**Gambar 14.** Kurva presentase ion Ni(II) yang teradsorpsi pada beberapa variasi massa adsorben

Uji kemampuan adsorpsi dilakukan dengan membuat variasi massa untuk setiap 2,5 ppm larutan nikel(II) yang akan diadsorpsi. Massa adsorben yang digunakan adalah sebanyak 0,08; 0,1; 0,2; 0,3; dan 0,6 gram. Tampak pada grafik di atas bahwa pada pH 5 didapatkan persentase adsorpsi paling banyak sebesar 86,4% menggunakan 0,3 gram adsorben. Kemampuan adsorpsi adsorben dalam mengikat ion nikel(II) dapat dihitung melalui persamaan berikut.

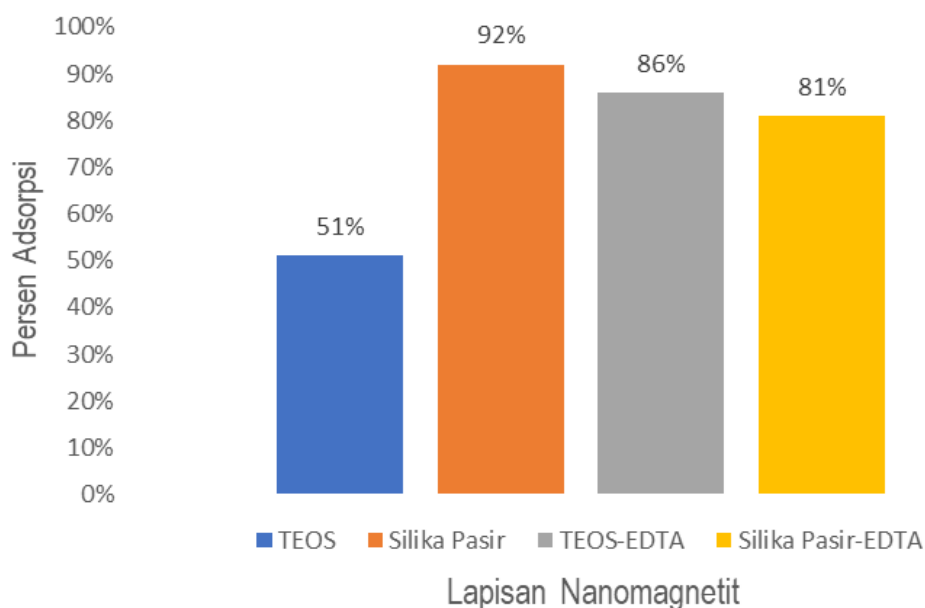
$$\text{Kemampuan adsorpsi (mg/g)} = \frac{\text{konsentrasi teradsorpsi } \left(\frac{\text{mg}}{\text{L}}\right)}{\text{massa adsorben(g)}} \times \text{volume larutan (L)}$$

Melalui persamaan di atas, diperoleh kemampuan adsorben  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA}$  dalam mengikat ion nikel(II) adalah sebesar 0,1336 mg/g.

### 3.5. Analisis kemampuan berbagai Adsorben nanomagnetit terlapis silika dalam mengikat Ion Logam Ni(II) yang terdapat dalam sampel

Sebagai adsorben yang digunakan untuk mengikat ion logam secara bertarget, perlu dilakukan analisis adsorben dalam mengikat beberapa ion logam secara bersamaan. Analisis dilakukan pada sampel yang mengandung 2,5 ppm ion logam Ni(II).

Adsorpsi dilakukan dengan beberapa adsorben yakni  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  TEOS,  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  silika pasir,  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -EDTA TEOS, dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -EDTA silika pasir. Proses adsorpsi dilakukan pada kondisi maksimum penyerapan ion logam Ni(II) yakni pada pH 5 menggunakan massa adsorben 0,3 gram untuk masing-masing adsorben yang sebelumnya telah diketahui merupakan massa adsorben dengan kapasitas penyerapan maksimum terhadap ion logam Ni(II).



**Gambar 15.** Presentase ion Ni(II) yang teradsorpsi pada sampel

Berdasarkan hasil analisis, tampak bahwa penambahan EDTA pada nanomagnetit terlapis TEOS meningkatkan kemampuan adsorben dalam adsorpsi ion logam Ni(II). Sementara pada nanomagnetit terlapis silika pasir mengalami penurunan kemampuan adsorpsi. Hal ini disebabkan karena nanomagnetit terlapis silika pasir memiliki ukuran partikel yang lebih besar dibandingkan dengan nanomagnetit terlapis TEOS sehingga dapat dengan mudah menyerap ion logam Ni(II). Penambahan EDTA pada nanomagnetit terlapis silika pasir diduga menyebabkan kerontokan pada permukaan adsorben yang relatif tebal sehingga daya serap adsorben berkurang.

## 4. Kesimpulan

Setelah dilakukan penelitian ini, didapati bahwa:

Adsorben  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -EDTA berhasil disintesis. Hasil karakterisasi instrumen SEM menunjukkan bahwa partikel yang disintesis memiliki ukuran 37,88 nm – 46,08 nm. Nilai kemagnetan yang diukur menggunakan instrumen VSM mengalami penurunan yakni 57 emu/g pada  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , 55 emu/g pada  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  TEOS, dan 48 emu/g pada  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  silika pasir. Pada karakterisasi menggunakan instrumen XRD, nilai puncak-puncak yang muncul telah sesuai dengan pedoman JCPDS No. 19-0629. Instrumen FTIR juga menunjukkan ikatan Fe-O pada puncak  $687\text{ cm}^{-1}$ , vibrasi ulur Si-O  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  TEOS dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  silika pasir tampak

pada puncak  $1095\text{ cm}^{-1}$  dan  $1033\text{ cm}^{-1}$ , serta ikatan C=O  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA TEOS}$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA}$  silika pasir pada puncak  $1627\text{ cm}^{-1}$  dan  $1630\text{ cm}^{-1}$ . Adapun kemampuan adsorpsi maksimum terletak pada pH 5 dengan penyerapan mencapai 51% untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{ TEOS}$ , 92% untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  silika pasir, 86% untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA TEOS}$ , dan 81% untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2\text{-EDTA}$  silika pasir.

### Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya atas dukungan Hibah Ristek atau Badan Riset dan Inovasi Nasional melalui skema Riset Dasar Unggulan Perguruan Tinggi (1207/UN.6.3.1/PT.00/2021), serta kepada Dr. Irma Kartika Kusumaningrum, S.Si., M.Si., Dr. Neena Zakia, S.Si., M.Si., dan Hanumi Oktiyani Rusdi, S.Pd., M.Si. sebagai dosen pembimbing yang telah membantu dalam penulisan artikel review ini.

### Daftar Pustaka

- [1] "214-Article Text-388-1-10-20180904".
- [2] A. MACHFIRO and M. MUNASIR, "Nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  Untuk Aplikasi Penyerap Logam  $\text{Cu}^{2+}$  Dalam Air," *Inov. Fis. Indones.*, vol. 9, no. 1, pp. 5–8, 2020, doi: 10.26740/ifi.v9n1.p5-8.
- [3] N. Ngatijo, D. R. Gusti, A. H. Fadhilah, and R. Khairunnisah, "Adsorben Magnetit Terlapis Dimerkaptosilika untuk Adsorpsi Anion Logam  $[\text{AuCl}_4]^-$  dan  $[\text{Cr}_2\text{O}_7]^-$ ," *J. Ris. Kim.*, vol. 11, no. 2, pp. 113–120, 2020, doi: 10.25077/jrk.v11i2.353.
- [4] A. M. Rawa'a, N. M. Tariq, and S. U. Wisam, "The Factors Effecting the Formation of Curcumin-Al (III) Complexes," *Pakistan J. Chem.*, vol. 5, no. 1, pp. 30–35, 2015, doi: 10.15228/2015.v05.i01.p05.
- [5] M. Hadi, P. Jurusan, E. Pembangunan, F. Ekonomi, and D. Juli, "Info Artikel," *Edaj*, vol. 2, no. 3, 2013, [Online]. Available: <http://journal.unnes.ac.id/sju/index.php/edaj>
- [6] N. Altunay and R. Gürkan, "A simple and efficient approach for preconcentration of some heavy metals in cosmetic products before their determinations by flame atomic absorption spectrometry," *Turkish J. Chem.*, vol. 40, no. 6, pp. 988–1001, 2016, doi: 10.3906/kim-1604-76.
- [7] A. Sharifi, R. Hallaj, and S. Bahar, "Preconcentration of Pb(II) by Magnetic Metal-Organic Frameworks and Analysis Using Graphite Furnace Atomic Absorption Spectroscopy," *J. Anal. Methods Chem.*, vol. 2023, no. li, 2023, doi: 10.1155/2023/5424221.
- [8] G. J. Dagil *et al.*, "Novel Alginate-Chitosan Amine-Functionalized Silica Coated Magnetic Composite For Heavy Metals Removal In Water (Komposit Baharu Alginat Kitosan Difungsikan Dengan Amina Bersalut Silika Bermagnet Untuk Penyingkiran Logam Berat Dalam Air)," *Malaysian J. Anal. Sci.*, vol. 27, no. 2, pp. 422–439, 2023.
- [9] X. Zeng, G. Zhang, and J. Zhu, "Selective adsorption of heavy metals from water by a hyper-branched magnetic composite material: Characterization, performance, and mechanism," *J. Environ. Manage.*, vol. 314, no. April, p. 114979, 2022, doi: 10.1016/j.jenvman.2022.114979.
- [10] S. N. Ishmah, M. D. Permana, M. L. Firdaus, and D. R. Eddy, "Extraction of Silica from Bengkulu Beach Sand using Alkali Fusion Method," *PENDIPA J. Sci. Educ.*, vol. 4, no. 2, pp. 1–5, 2020, doi: 10.33369/pendipa.4.2.1-5.
- [11] N. Bukit, E. Frida, P. Simamoora, and T. Sinaga, "Analisis difraksi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  metode kopresipitasi dengan polietilen glikol 6000," *Pros. Semin. Nas. Fis.*, vol. 4, pp. 163–166, 2015.
- [12] A. D. Salman *et al.*, "Synthesis and surface modification of magnetic  $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$  core-shell nanoparticles and its application in uptake of scandium (III) ions from aqueous media," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 28, no. 22, pp. 28428–28443, 2021, doi: 10.1007/s11356-020-12170-4.

- [13] M. Yusuf, D. Suhendar, and E. Hadisantoso Prabowo, "Edisi Juli 2014 Volume VIII No. 1," *UIN SGD Bandung*, vol. VIII, no. 1, pp. 159–181, 2014.
- [14] G. A. P. K. Wardhani, N. Nurlela, and M. Azizah, "Silica Content and Structure from Corncob Ash with Various Acid Treatment (HCl, HBr, and Citric Acid)," *Molekul*, vol. 12, no. 2, p. 174, 2017, doi: 10.20884/1.jm.2017.12.2.382.
- [15] L. Rumiyantri, C. Destiana, R. Oktaviani, S. Sembiring, S. Syafridi, and N. L. G. R. Juliasih, "Pengujian Gugus Fungsi Silika Berbasis Sekam Padi Dengan Variasi Suhu & Konsentrasi Cetyltrimethylammonium Bromide Sebagai Bahan Baku Mesoporous Silica," *J. Teor. dan Apl. Fis.*, vol. 9, no. 2, pp. 153–158, 2021, doi: 10.23960/jtaf.v9i2.2727.
- [16] T. Prayogo and B. Budiman, "Survei Potensi Pasir Kuarsa Di Daerah Ketapang Propinsi Kalimantan Barat," *J. Sains dan Teknol. Indones.*, vol. 11, no. 2, pp. 126–132, 2012, doi: 10.29122/jsti.v11i2.825.
- [17] H. K. Can, S. Kavlak, S. ParviziKhosroshahi, and A. Güner, "Preparation, characterization and dynamical mechanical properties of dextran-coated iron oxide nanoparticles (DIONPs)," *Artif. Cells, Nanomedicine Biotechnol.*, vol. 46, no. 2, pp. 421–431, 2018, doi: 10.1080/21691401.2017.1315428.
- [18] S. Rashidi, P. Iranmanesh, and P. Salarizadeh, "Materials Science & Engineering C Fabrication , optimization , and characterization of ultra-small superparamagnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> and biocompatible Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> @ ZnS core / shell magnetic nanoparticles : Ready for biomedicine applications," *Mater. Sci. Eng. C*, vol. 98, no. September 2017, pp. 205–212, 2019, doi: 10.1016/j.msec.2018.12.147.
- [19] S. S. Alterary and A. Alkhomees, "Synthesis , surface modification , and characterization of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> @ SiO<sub>2</sub> core @ shell nanostructure," pp. 384–391, 2021.
- [20] S. H. Chaki, T. J. Malek, M. D. Chaudhary, J. P. Tailor, and M. P. Deshpande, "Magnetite Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles synthesis by wet chemical reduction and their characterization", doi: 10.1088/2043-6262/6/3/035009.
- [21] Y. Lin, W. Jing, P. Kang, Z. Xiaoming, W. Zhouping, and X. Wenshui, "Preparation and characterization of Core/Shell-type Ag/chitosan nanoparticles with antibacterial activity," *Bull. Korean Chem. Soc.*, vol. 32, no. 4, pp. 1277–1281, 2011, doi: 10.5012/bkcs.2011.32.4.1277.
- [22] N. I. Chamimmah Lailis dan Irminda Kris Murwani and J. Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Institut Teknologi Sepuluh Nopember, ISBN 978-602-98130-0-5 SEMINAR NASIONAL KIMIA Surabaya, 23 Nopember 2010 Diselenggarakan oleh Jurusan Kimia FMIPA-ITS Sintesis Dan Karakterisasi Senyawa Kompleks Nikel(li) Dengan Ligan Etilendiamintetraasetat (EDTA).