

Green-Synthesis Nanopartikel SnO₂ Termediasi Ekstrak Daun Pelawan (*Tristaniopsis merguensis* Griff.)

Mustari^{1*}, Evi.J¹, Aliefia Noor¹, Rifqi Almusawi Rafsanjani², Yuant Tiandho¹

¹Jurusan Fisika, Universitas Bangka Belitung
Jl. Kampus Peradaban, Bangka, Kepulauan Bangka Belitung, 33172

²Departemen Fisika, Universitas Indonesia
Kampus UI Depok, Depok, Jawa Barat 16424

*e-mail : Mustari100314@gmail.com

Abstract

*SnO₂ nanoparticles are materials that have great potential in gas sensor devices. In this article, the synthesis of SnO₂ nanoparticles is carried out through the mediation of pelawan (*Tristaniopsis merguensis* Griff.) leaf extract. The use of mediators of natural materials in this synthesis aims to make the synthesis process more environmentally friendly and lower in cost compared to conventional chemical and physical methods. Pelawan extract contains high antioxidant compounds. Thus, it can inhibit the agglomeration of SnO₂ particles. Based on the variation of pH synthesis, it is known that the highest purity of SnO₂ phase occurs at pH 7 while for alkaline conditions, there is an impurity, i.e., Sn₆O₄(OH)₄. Calcination temperature has a very significant effect on the growth of SnO₂ nanoparticle crystals. High temperatures will increase the size of the crystallite and the crystallinity.*

Keywords: *green-synthesis, pelawan, tin oxide*

PENDAHULUAN

Sejak puluhan tahun yang lalu, Kepulauan Bangka Belitung telah dikenal sebagai provinsi penghasil timah terbesar di Indonesia. Sebagai contoh, pada tahun 2014 produksi timah di provinsi ini mencapai 19.719,32 ton/tahun sehingga hal menjadikan Indonesia sebagai salah satu negara penghasil timah terbesar di dunia (Tiandho, et al., 2018; Tiandho, 2019). Bahkan dengan asumsi penambangan timah yang stabil dapat diprediksi bahwa cadangan timah lepas pantai di provinsi ini dapat ditambang hingga 50 tahun ke depan. Namun jumlah penambangan timah yang

tinggi tersebut belum diikuti oleh proses pengolahan yang baik. Timah yang diperjualbelikan di provinsi ini masih berupa bijih timah atau timah hasil peleburan (Yunianto & Sari, 2009).

Nanopartikel timah oksida (SnO₂) merupakan material yang banyak diteliti dalam pengembangan sensor gas. Hal ini dikarenakan nanopartikel SnO₂ memiliki sifat yang baik dalam mengidentifikasi keberadaan senyawa gas seperti etilen, etanol, dan gas CO karena memiliki bandgap semikonduktor yang luas, resistansi yang rendah, serta kemampuannya memberikan konduktivitas

elektrik yang baik untuk keperluan sensor gas. Berbagai penelitian telah menyebutkan bahwa sensitivitas sensor gas berbasis logam oksida sangat bergantung pada teknik sintesis, morfologi, struktur kristal, serta ukuran kristalit nanopartikel. Pada SnO₂ semakin kecil ukuran kristalit maka semakin tinggi sensitivitasnya dalam mendeteksi gas (Akhir, et al., 2016). Ketika butiran partikel SnO₂ berukuran nano maka partikel-partikel tersebut akan memiliki konduktivitas yang buruk di udara akibat kekurangan muatan pembawa dibandingkan ketika partikel SnO₂ berukuran mikro. Sehingga ketika nanopartikel SnO₂ terpapar gas maka akan banyak pembawa muatan terlepas dari kondisinya ke pita konduksi kemudian menghasilkan perubahan konduktansi yang besar (Huang & Wan, 2009).

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk mensintesis nanopartikel SnO₂ adalah sol-gel (Salavati-Niasari, et al., 2016), kopresipitasi (Alam, et al., 2015), dan hidrotermal (Darr, et al., 2017). Tetapi metode sintesis nanopartikel konvensional tersebut memiliki beberapa permasalahan seperti: (i) stabilitas yang tidak sesuai dengan lingkungan, (ii) bersifat racun, (iii) membutuhkan biaya besar, dan (iv) permasalahan terkait daur ulang/regenerasi. Untuk mengatasi keterbatasan tersebut

maka beberapa tahun terakhir mulai diusulkan era baru *green-synthesis* dalam sains dan teknologi material. Pada dasarnya *green-synthesis* melibatkan beberapa prinsip seperti minimalisasi limbah, penggunaan pelarut/bahan pembantu yang ramah lingkungan, serta material yang terbarukan. Sehingga melalui pengembangan *green-synthesis* akan dapat dicapai teknologi rekayasa material yang ekonomis, berkelanjutan, dan ramah lingkungan (Singh, et al., 2018)

Kebanyakan *green-synthesis* dari nanopartikel logam oksida mengadopsi material biologis seperti bakteri, fungi, alga, dan ekstrak tanaman (Singh, et al., 2018). Ekstrak tanaman mengandung enzim, protein, flavonoid, dan terpenoid yang dapat berperan sebagai agen bioreduktor dan agen stabilizer nanopartikel (Mittal, et al., 2013). Beberapa tanaman yang dapat digunakan diantaranya adalah *Berberis vulgaris* (Behravan, et al., 2019), *Syngonium podophyllum* (Yasir, et al., 2018), *Ocimum sanctum* (Jain & Mehata, 2017), *Calotropis procera* (Babu & Prabu, 2011), serta teh (*Camelia sinensis*).

Salah satu tanaman yang melimpah di Kepulauan Bangka Belitung dan berpotensi digunakan sebagai mediator dalam metode *green-synthesis* logam oksida adalah pohon pelawan (*Tristanopsis merguensis* Griff).

Ekstrak daun pelawan mengandung senyawa antioksidan seperti flavonoid, saponin, dan tanin dalam jumlah yang tinggi sehingga berpotensi untuk dimanfaatkan sebagai agen bioreduktor nanopartikel (Kadri, et al., 2019; Enggiwanto, et al., 2018). Oleh karena itu, untuk mengetahui efektivitas ekstrak daun pelawan sebagai agen bioreduktor nanopartikel maka dalam artikel ini dilakukan penelitian *green-synthesis* nanopartikel SnO₂ termediasi ekstrak pelawan. Karakteristik yang diamati dalam penelitian ini meliputi fasa kristal nanopartikel SnO₂ serta ukuran kristalit dan derajat kristalinitasnya. Diharapkan dari penelitian ini akan diperoleh informasi metode sintesis SnO₂ yang ramah lingkungan dan berkelanjutan dalam rekayasa timah di Kepulauan Bangka Belitung.

METODE PENELITIAN

Pembuatan Ekstrak Daun Pelawan

Daun pelawan yang digunakan dalam penelitian diambil dari hutan pelawan di daerah Bangka. Sebelum digunakan dalam pembuatan ekstrak daun tersebut dicuci untuk menghilangkan pertikel debu dan dikeringkan pada temperatur ruang. Setelah kering sebanyak 2 gram daun pelawan kemudian dihaluskan dan ditambahkan 20

ml etanol lalu diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 1.000 ppm selama 30 menit. Ekstrak daun pelawan yang berwarna hijau tua disaring menggunakan Whatman paper no. 1 dan digunakan untuk proses selanjutnya.

Sintesis Nanopartikel Timah Oksida

Untuk mengetahui pengaruh pH terhadap karakteristik kristal SnO₂ yang terbentuk maka dilakukan pengujian dengan variasi pH sintesis. Sebanyak 3 gram SnCl₂.2H₂O (98%, Xilong Chemical Co. Ltd.) dilarutkan ke dalam 100 ml akuades. Setelah homogen larutan tersebut ditetesi NaOH (98%, Xilong Chemical Co. Ltd.) 0,5 M dengan variasi pH 7, 8, 9, dan 11 hingga terbentuk gel. Gel tersebut kemudian di-*aging* selama 24 jam. Selanjutnya gel yang terbentuk disaring menggunakan Whatman paper no. 1 dan di cuci menggunakan akuades. Gel yang diperoleh dikeringkan menggunakan oven pada temperatur 250°C selama satu jam. Karakteristik serbuk SnO₂ dengan variasi pH ditentukan berdasarkan pengujian difraksi sinar-x (XRD).

Untuk mengetahui efektivitas penggunaan ekstrak daun pelawan terhadap reduksi ukuran partikel SnO₂ maka dilakukan analisis berdasarkan variasi temperatur kalsinasi. Metode yang

diterapkan sama seperti metode sebelumnya hanya saja ditambahkan ekstrak daun pelawan sebanyak 25% volume larutan SnCl₂. Setelah homogen larutan tersebut kemudian dititrasi menggunakan NaOH 0,5 M hingga mencapai pH 7 dan di-aging selama 24 jam. Gel yang terbentuk kemudian dioven dengan suhu 250°C dan dilanjutkan dengan kalsinasi pada temperatur 1000°C, 750°C, dan 500°C selama 3 jam. Karakteristik nanopartikel SnO₂ yang diperoleh ditentukan berdasarkan analisis XRD.

HASIL DAN PEMBAHASAN

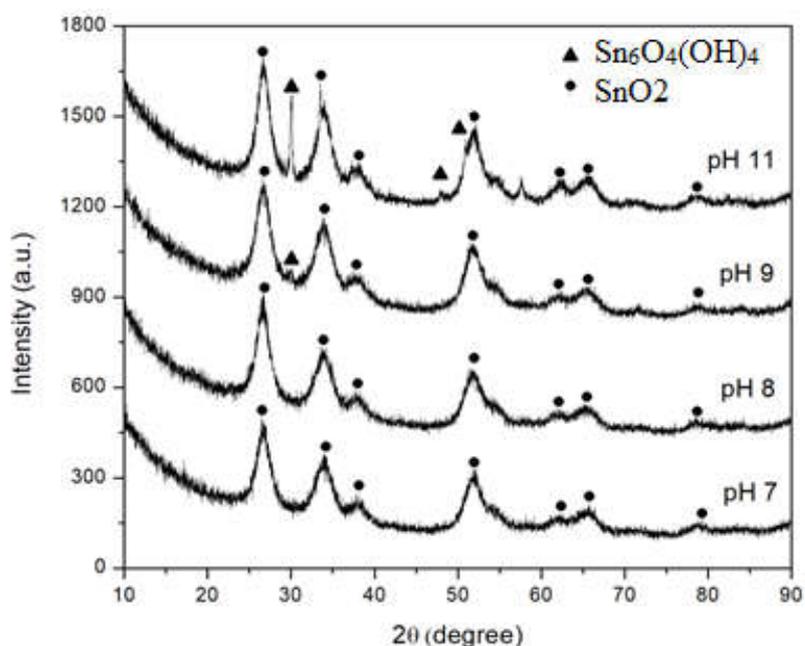
Hasil Variasi pH

Pada Gambar 1 ditunjukkan pola hasil analisis XRD nanopartikel SnO₂ berdasarkan variasi pH. Hasil XRD dianalisis dengan menggunakan software X'Pert HighScore Plus. Berdasarkan perbandingan antara data referensi (PDF 2 – Ref. Code: 01-070-4277) dapat dinyatakan bahwa keempat variasi pH sintesis nanopartikel SnO₂ telah menghasilkan fasa SnO₂ dengan sistem kristal tetragonal dan *space group* P 42/m n m. Adapun parameter kisi kristal SnO₂ adalah a (nm) = b (nm) = 47,35; c (nm) = 31,83 dengan $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Keempat variasi pH menghasilkan puncak-puncak dengan

orientasi yang relatif tidak jauh berbeda meskipun keempatnya memiliki tingkat kristalinitas yang buruk. Hal ini dikarenakan temperatur pengeringan belum menyediakan energi termal yang cukup tinggi untuk memenuhi proses pertumbuhan kristal secara optimal. Ketiga puncak tertinggi dari pola XRD keempat sampel berkaitan dengan sudut (2θ): 26,6°, 33,9°, dan 51,81°.

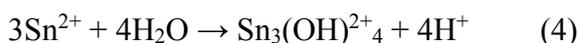
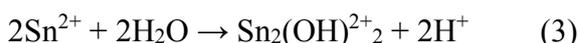
Hal yang menarik adalah ketika pH sintesis nanopartikel SnO₂ berada pada kondisi basa. Pada pH di atas 9 mulai terbentuk fasa impuritas berupa Sn₆O₄(OH)₄ sebagai akibat tingginya jumlah NaOH yang ditambahkan ke dalam larutan SnCl₂. Begitu pula untuk kondisi pH 11 puncak-puncak yang berkaitan dengan impuritas tersebut semakin terlihat tajam dan tinggi. Kemunculan impuritas tersebut dapat dilihat pada puncak di sekitar sudut (2θ): 30,05°, 48,03°, 50,86°. Hal ini dapat dipahami karena pH 11 memiliki gugus OH⁻ yang jumlahnya lebih tinggi dibandingkan dengan pH 9. Terbentuknya fasa impuritas Sn₆O₄(OH)₄ pada kondisi basa karena prekursor SnCl₂.2H₂O ketika dilarutkan ke dalam air akan membentuk larutan Sn(OH)Cl yang berwarna putih melalui reaksi (Ghosh & Roy, 2017),

$$\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Sn(OH)Cl} + \text{HCl} \quad (1)$$

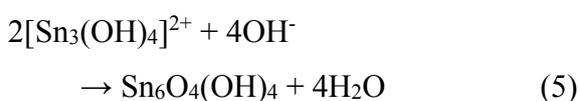


Gambar 1. Pola analisis XRD nanopartikel SnO₂ untuk variasi pH

Hasil tersebut merupakan senyawa yang mudah untuk membentuk kation Sn²⁺ berdasarkan hubungan (Ibarguen, et al., 2007),



Awalnya pada pH relatif rendah (dalam penelitian ini pH = 1), penambahan NaOH akan mengonsumsi H⁺ radikal yang ditandai dengan peningkatan pH. Selanjutnya proses tersebut akan memfasilitasi kondensasi membentuk Sn₆O₄(OH)₄ melalui reaksi berikut,

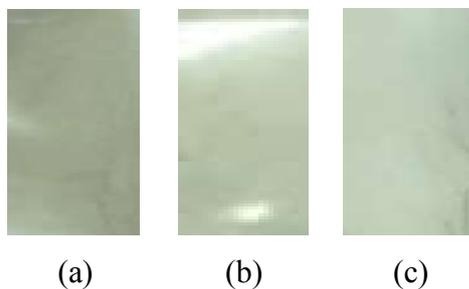


Dengan demikian dapat dinyatakan bahwa kondisi terbaik untuk proses sintesis nanopartikel SnO₂ dengan prekursor SnCl₂ adalah pada pH 7.

Hasil variasi temperatur kalsinasi

Setelah proses kalsinasi dihasilkan serbuk nanopartikel SnO₂ seperti ditunjukkan oleh Gambar 2. Tampak bahwa setelah melalui kalsinasi pada temperatur 500°C dan 750°C serbuk masih berwarna hijau kecoklatan sebagai indikasi masih tersisnya ekstrak daun pelawan. Temperatur 750°C menghasilkan warna yang lebih putih sebagai indikasi lebih sedikitnya ekstrak daun pelawan dibanding temperatur 500°C. Adapun untuk serbuk SnO₂ setelah dikalsinasi pada temperatur

1000□ memiliki warna yang putih sebagai ciri dari serbuk SnO₂.



Gambar 2. Hasil kalsinasi serbuk nanopartikel SnO₂ pada temperatur: (a) 500°C, (b) 750°C, dan (c) 1000°C.

Pola hasil analisis XRD serbuk nanopartikel SnO₂ setelah melalui kalsinasi selama 3 jam ditunjukkan oleh Gambar 3. Tampak bahwa seluruh variasi temperatur telah menghasilkan fasa SnO₂ (PDF-2 Ref. Code: 01-070-4177). Setelah proses kalsinasi pada temperatur 250□ tampak bahwa tiga puncak tertinggi yang berkaitan dengan SnO₂ adalah sudut (2θ): 26,68°; 34,02°; dan 51,95°. Adapun kalsinasi pada temperatur 500□ dihasilkan tiga puncak tertinggi yang berkaitan dengan SnO₂ yaitu: 26,75°; 34,04°; dan 51,88°. Pada kalsinasi dengan temperatur 750□ akan dihasilkan tiga puncak tertinggi berupa: 26,69°;

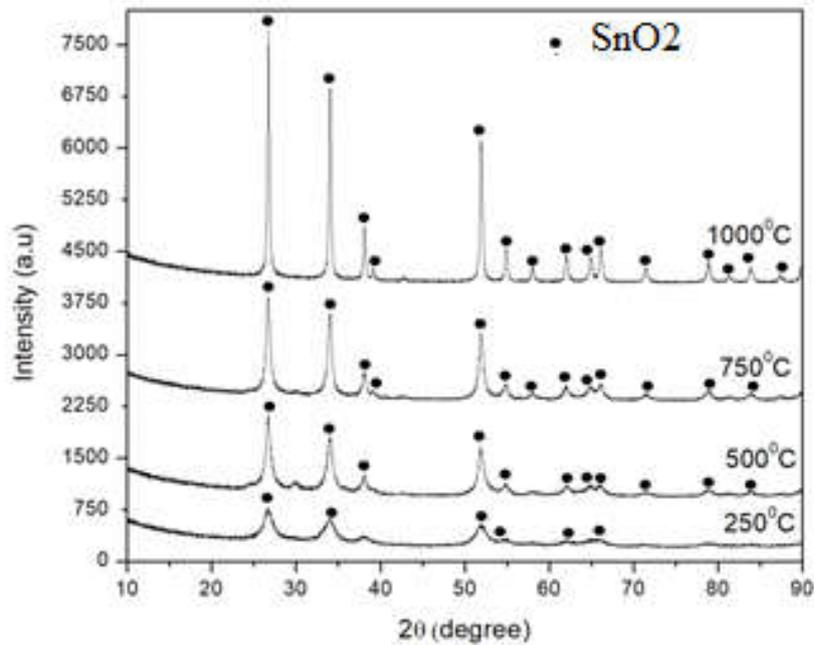
34,04°; dan 51,92°. Sedangkan untuk kalsinasi dengan temperatur 1000□ dihasilkan tiga puncak tertinggi antara lain: 26,75°; 34,04°; dan 51,88°.

Selain itu, apabila diperhatikan lebih lanjut terdapat dekomposisi impuritas yang terbentuk pada proses kalsinasi 500□. Semakin tinggi temperatur kalsinasi maka kehadiran impuritas tersebut semakin lenyap adanya proses dekomposisi akibat perlakuan termal (Ghosh & Roy, 2017).

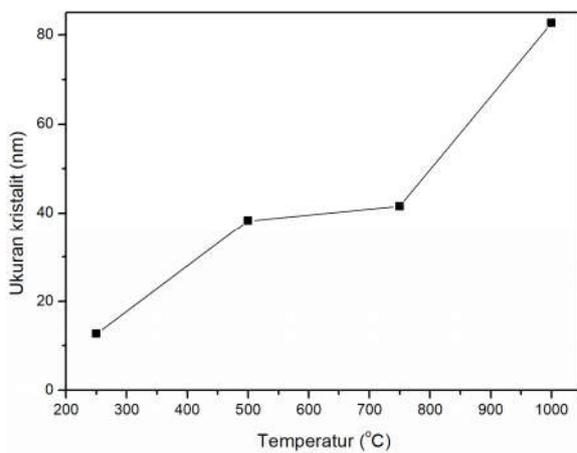
Dengan menggunakan persamaan Debye-Scherrer:

$$\tau = \frac{K\lambda}{B \cos \theta} \quad (6)$$

dengan K adalah faktor bentuk nanopartikel (dalam penelitian ini digunakan $K = 0,9$), λ adalah panjang gelombang sinar-x yang digunakan, B adalah FWHM, dan θ adalah sudut Bragg maka dapat ditentukan ukuran kristalit dari nanopartikel yang disintesis dalam penelitian ini (τ). Hasil dari penerapan persamaan Debye-Scherrer pada pola XRD dalam penelitian ini memberikan informasi ukuran kristalit rata-rata pada tiap sampel dengan variasi temperatur kalsinasi seperti ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 3. Pola analisis XRD nanopartikel SnO₂ berdasarkan variasi temperatur kalsinasi.

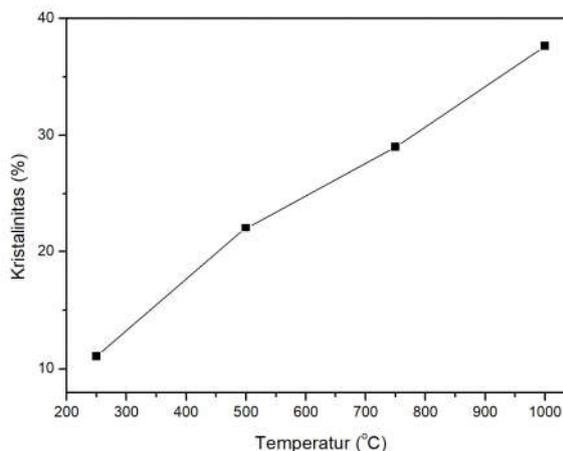


Gambar 4. Hubungan temperatur kalsinasi nanopartikel SnO₂ dengan ukuran kristalit

Tampak bahwa semakin tinggi temperatur kalsinasi maka ukuran kristalit nanopartikel SnO₂ yang disintesis dalam penelitian ini semakin besar. Ukuran kristalit setelah kalsinasi pada temperatur

500°C adalah 38,28 nm. Ukuran kristalit setelah kalsinasi pada temperatur 750°C adalah 41,569 nm. Sedangkan ukuran kristalit pada kalsinasi dengan temperatur 1000°C adalah 82,657 nm. Hal ini dapat dipahami karena semakin tinggi temperatur kalsinasi maka jumlah ekstrak daun pelawan yang berfungsi untuk menghambat proses aglomerasi partikel-partikel SnO₂ semakin sedikit. Oleh karena itu, ketika temperatur makin tinggi maka proses aglomerasi antar partikel SnO₂ tidak lagi dapat dihindari dan membentuk partikel yang berukuran lebih besar. Namun demikian, seluruh variasi temperatur kalsinasi yang digunakan dalam penelitian ini dapat menghasilkan nanopartikel SnO₂.

Pengamatan lebih lanjut menunjukkan bahwa semakin tinggi temperatur kalsinasi maka puncak pola XRD nanopartikel SnO₂ semakin tajam. Hal ini mengindikasikan bahwa perlakuan termal memberi efek yang sangat signifikan terhadap kristalinitas. Berdasarkan hasil pengukuran dengan menggunakan software X'Pert HighScore Plus dengan mengabaikan konstanta latar maka dapat diperoleh derajat kristalinitas seperti pada Gambar 5. Tampak bahwa semakin tinggi temperatur kalsinasi maka puncak-puncak yang berkaitan nanopartikel SnO₂ semakin tajam. Pada pemanasan dengan temperatur 250 °C derajat kristalinitas nanopartikel SnO₂ adalah 11,09%. Kalsinasi pada temperatur 500 °C akan menghasilkan nanopartikel SnO₂ dengan derajat kristalinitas 22,05%. Kalsinasi pada temperatur 750 °C akan menghasilkan nanopartikel SnO₂ dengan derajat kristalinitas 29% dan kalsinasi pada temperatur 1000 °C akan menghasilkan nanopartikel SnO₂ dengan derajat kristalinitas mencapai 37,64%. Hal ini dapat terjadi karena semakin tinggi temperatur kalsinasi maka semakin tinggi energi termal yang tersedia untuk proses pertumbuhan kristal.



Gambar 5. Hubungan temperatur kalsinasi nanopartikel SnO₂ dengan kristalinitas

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dipaparkan dapat disimpulkan bahwa ekstrak daun pelawan dapat digunakan sebagai bioreduktor dalam proses sintesis nanopartikel SnO₂. Hal ini disebabkan ekstrak daun pelawan mengandung senyawa antioksidan yang dapat berperan sebagai matriks penjebak partikel sehingga mencegah terjadinya aglomerasi. Proses sintesis nanopartikel SnO₂ terbaik dilakukan pada pH 7. Apabila pH dalam proses sintesis terlalu tinggi maka akan terbentuk impuritas berupa Sn₆O₄(OH)₄.

Temperatur kalsinasi memiliki dampak yang sangat signifikan pada pembentukan kristal nanopartikel SnO₂. Semakin tinggi temperatur kalsinasi maka semakin tinggi derajat kristalinitas SnO₂. Begitu pula dengan ukuran kristalit

nanopartikel SnO₂ yang dihasilkan. Temperatur kalsinasi yang tinggi dapat merusak struktur matriks penjebak yang dihasilkan oleh senyawa ekstrak pelawan, sehingga proses aglomerasi antar partikel SnO₂ semakin meningkat.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didanai oleh Kementerian Riset, Teknologi, dan Pendidikan Tinggi – Direktorat Jenderal Pembelajaran dan Kemahasiswaan melalui skema Program Kreativitas Mahasiswa Bidang Penelitian Eksakta tahun 2019 (PKM-PE 2019) dengan Surat Penugasan No. B/31/B.B3/KM.02.01/2019.

DAFTAR PUSTAKA

Akhir, M., Mohamed, K., Lee, H. & Rezan, S. 2016. Synthesis of tin oxide nanostructures using hydrothermal method and optimization of its crystal size by using statistical design of experiment. *Procedia Chemistry* (19): 993-998.

Alam, R. et al. 2015. Structural, magnetic and microwave absorption properties of doped Ba-hexaferrite nanoparticles synthesized by co-precipitation method. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* (381): 1-9.

Babu, S. & Prabu, H. 2011. Synthesis of AgNPs using the extract of *Calotropis procera* flower at room temperature. *Mater. Lett.* (65): 1675-1677.

Behravan, M. et al. 2019. Facile green synthesis of silver nanoparticles using *Berberis vulgaris* leaf and root aqueous extract and its antibacterial activity. *International Journal of Biological Macromolecules*, 124(1): 148-154.

Darr, J., Zhang, J., Makwana, N. & Weng, X. 2017. Continuous hydrothermal synthesis of inorganic nanoparticles: applications and future directions. *Chemical Reviews* 117(17): 11125-11238.

Enggiwanto, S. et al. 2018. Ekstraksi daun pelawan (*Tristanopsis merguensis*) sebagai antioksidan menggunakan microwave assisted extraction (MAE). *Indonesian Journal of Pure and Applied Chemistry* 1(2): 50-55.

Ghosh, S. & Roy, S. 2017. Effect of ageing on Sn₆O₄(OH)₄ in aqueous medium— simultaneous production of SnO and SnO₂ nanoparticles at room temperature. *J. Sol-Gel Sci. Technol.* 81(3): 769-773.

Huang, J. & Wan, Q. 2009. Gas sensor based on semiconducting meta oxide one-dimensional nanostructures. *Sensors* 9(12): 9903-9924.

- Ibarguen, C. et al., 2007. Synthesis of SnO₂ nanoparticles through the controlled precipitation route. *Mater. Chem. Phys.* 101: 433-440.
- Jain, S. & Mehata, M. 2017. Medicinal Plant Leaf Extract and Pure Flavonoid Mediated Green Synthesis of Silver Nanoparticles and their Enhanced Antibacterial Property. *Scientific Reports* 7: 15867.
- Kadri, M., Sunarni, T., Pamudji, G. & Zamzani, I. 2019. Aktivitas antioksidan ekstrak etanol daun pelawan (*Tristanopsis obovate. Benn*) dengan metode penangkapan radikal bebas 2,2'-difenil-1-pikrilhidrazil. *Journal of Current Pharmaceutical Sciences* 2(2): 167-172.
- Mittal, A., Chisti, Y. & Banarjee, U. 2013. Synthesis of metallic nanoparticles using plant extracts. *Biotechnology Advances* 31: 346-356.
- Salavati-Niasari, M. et al. 2016. Synthesis, characterization, and morphological control of ZnTiO₃ nanoparticles through sol-gel processes and its photocatalyst application. *Advanced Powder Technology* 27(5): 2066-2075.
- Singh, J. et al., 2018. 'Green' synthesis of metals and their oxide nanoparticles: applications for environmental remediation. *Journal of Nanotechnology* 16(1): 84.
- Tiandho, Y., 2019. Quality improvement of water from post tin minig based on a wasted cockle shell. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 496(1): 012058.
- Tiandho, Y. et al. 2018. Utilization of wasted cockle shell as a natural coagulant and a neutralizer of polluted water in Bangka Belitung islands, Indonesia. *Journal of Physics: Conference Series* 1013: 012181.
- Yasir, M. et al. 2018. Green Synthesis of Silver Nanoparticles Using Leaf Extract of Common Arrowhead Houseplant and Its Anticandidal Activity. *Pharmacognosy Magazine* 13: S840-S844.
- Yunianto, B. & Sari. 2009. Kajian problema pertambangan timah di Provinsi Kepulauan Bangka Belitung sebagai masukan kebijakan pertimahan nasional. *Jurnal Teknologi Mineral dan Batubara* 5(3): 97-113.