Jurnal Sains Materi Indonesia
Indonesian Journal of Materials Science

Edisi Khusus Oktober 2007, hal : 156 - 161
ISSN : 1411-1098

Akreditasi LIPI Nomor : 536/D/2007
Tanggal 26 Juni 2007

EFEK KONDISI PEMBASAHAN DALAM PEMBENTUKAN NANOSFER BERBASIS OKSIDA BESI DAN *PLA*

Sonny Affandi[1], Mujamilah[2], Mersi Kurniati[1] dan Sudaryanto[2]
[1]Departemen Fisika, FMIPA-IPB
Kampus Darmaga, Bogor
[2]Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN)-BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

ABSTRAK

EFEK KONDISI PEMBASAHAN DALAM PEMBENTUKAN NANOSFER BERBASIS OKSIDA BESI DAN *PLA*. Nanosfer berbasis oksida Fe dan *PLA* telah dibuat dengan memvariasikan parameter kondisi pembasahan (*wetting process parameter*). Parameter yang divariasikan meliputi kecepatan proses pengadukan dan kekentalan larutan pembasah. Hasil karakterisasi *SEM* menunjukkan adanya kecenderungan ukuran partikel yang makin kecil dengan naiknya kecepatan adukan dan makin homogen dengan menurunnya kekentalan larutan. Identifikasi fasa pada pola difraksi sinar-X menunjukkan tetap terbentuknya fasa kristalin Fe_3O_4/γ-Fe_2O_3 dan *PLA* sampai batas parameter proses yang digunakan. Namun demikian, hasil pengukuran sifat magnetik dengan *VSM* menunjukkan belum optimalnya pengisian serbuk magnetik dalam sistem nanosfer sehingga nilai magnetisasinya masih rendah. Dari rangkaian proses yang telah dilakukan nanosfer yang dapat dibuat mempunyai ukuran terkecil pada kisaran 500 nm dan nilai magnetisasi tertinggi 7,27 emu/gram.

Kata kunci : Nanosfer, Oksida besi, *PLA*, Proses pembasahan

ABSTRACT

WETTING CONDITION EFFECT ON IRON OXIDE/POLY LACTID ACIDS BASE NANOSPHERE FORMATION. Iron oxide/PLA base nanosphere system has been synthesis using sonochemical method with varying its wetting process parameter. Varied parameter include its mixing speed and wetting solution viscosity. SEM characterization results showed the tendency of particle size to decrease with increasing of mixing speed and more homogenize for lower viscosity. X-ray diffraction data showed the existence of Fe_3O_4/γ-Fe_2O_3 and PLA crystalline for all the synthesis parameter. However, magnetic measurement with *VSM* give lower magnetization value than expected due to un-optimal loading process of iron oxide within PLA sphere. The smallest spheres are of about 500 nm in diameter with magnetization value of 7.27 emu/gram.

Key words : Nanosphere, Iron oxide, PLA, Wetting process

PENDAHULUAN

Perkembangan bahan magnetik pada dekade terakhir ini semakin bervariasi, baik dari sisi ilmiah maupun pengembangan aplikasi. Dari sisi ilmiah banyak ditemukan fenomena-fenomena baru yang makin membuka wawasan pengertian tentang berbagai kajian teoritis. Dari segi aplikasi juga terbuka berbagai kemungkinan aplikasi baru dengan manfaat yang lebih luas [1]. Salah satu perkembangan yang banyak ditelaah pada tahun-tahun terakhir adalah pengembangan ke arah nano partikel magnet. Nano partikel magnet menawarkan beberapa kemudahan dalam aplikasi biomedis [2].

Bahan nanopartikel magnet ini mempunyai ukuran yang bisa dikontrol dalam pembentukannya dari ukuran 1 nanometer sampai mikrometer. Karena ukuran yang kecil dibandingkan dengan sel (10 μm hingga 100 μm), virus (20 nm hingga 450 nm), protein (5 nm hingga 50 nm) atau gen (lebar 2 nm dan panjang 10 nm hingga 100 nm), menjadikan bahan nanopartikel magnetik dapat berinteraksi dengan satuan biologi [3].

Agar bahan dapat teraplikasi dalam sistem biologi, untuk menghindari toksisitas dan reaksi negatif sistem biologi, maka sifat biodegradabel dan biokompatibilitas nanopartikel magnetik harus diperhatikan [4]. Sifat ini dicapai dengan memakai bahan dasar nano partikel magnetik yang non toksik, misal oksida Fe maupun dengan melapisi nano partikel magnetik dengan berbagai bahan organik/anorganik yang bersifat biokompatibel *biodegradable*. Berbagai penelitian saat ini dikembangkan untuk mengoptimalkan sifat nano partikel ini baik dengan mengembangkan berbagai tipe bahan maupun metode pembuatannya [5].

Pada makalah ini dilaporkan hasil kegiatan pelapisan nano partikel magnetik berbasis oksida Fe dengan bahan polimer *biodegradeble* biokompatibel *PLA* (*Poly Lactid Acid*). Proses pelapisan dilakukan dengan metode emulsifikasi dengan memakai proses sonokimia dan sebagai stabilizer dipakai bahan *PVA*.

Secara umum, kegiatan ini didasari dengan asumsi bahwa untuk mendapatkan nano partikel oksida besi terlapis *PLA* dengan ukuran sekecil dan sehomogen mungkin, maka serbuk oksida Fe yang cenderung membentuk agregat harus dapat dipisahkan satu sama lain. Untuk itu pada kegiatan ini dipelajari pengaruh parameter kecepatan pengadukan dan kekentalan larutan emulsi pada fasa, distribusi ukuran serta sifat magnetik nano partikel terlapis.

METODE PERCOBAAN

Bahan

Bahan yang digunakan adalah bahan magnetik berupa oksida Fe_3O_4 berukuran 10 nm hingga 20 nm diperoleh dari Aldrich, polimer *Polivinil Alkohol* (*PVA*) dengan berat molekul 72,000 kDa sebagai surfaktan dan *Poly Lactid Acid* (*PLA*), berat molekul 39,000 kDa dalam bentuk pelet. Pelarut yang digunakan adalah kloroform yang diperoleh dari Merck (Jerman). Air sebagai pelarut PVA digunakan aquades. Dalam proses ini dipersiapkan larutan *PLA* dalam kloroform dengan konsentrasi 10 %w/w dan larutan PVA dalam *aquadest* dengan konsentrasi 5 %w/w sebagai larutan induk.

Peralatan

Peralatan yang digunakan adalah ultrasonik *probe* (Sonicks dan Material, INC, USA, Model VCX 750, Ti Horn, 20 kHz) dan mixer.

Cara kerja

Ada 3 proses dalam pembuatan nanosfer magnetik.

Proses pertama, *wetting* atau pembasahan partikel. Proses *wetting* (pembasahan) ini dilakukan dengan mencampurkan 0,1 gram Fe_3O_4 kedalam 5 ml larutan *PLA* 10 %w/w kemudian diaduk dengan kecepatan dan waktu tertentu hingga homogen. Pada proses ini dilakukan variasi kecepatan pengadukan serta penambahan kloroform pada larutan induk.

1. Variasi kecepatan pengadukan : 2500 *rpm*, 4100 *rpm*, 6100 *rpm* dan 7000 *rpm* dengan waktu pengadukan selama 1 menit.
2. Variasi penambahan kloroform : 0 mL, 10 mL dan 15 mL; dengan kecepatan pengadukan 4100 *rpm* selama 1 menit

Proses kedua adalah emulsifikasi, dengan menggunakan alat sonokimia. Pada proses ini, larutan hasil pertama dicampurkan dengan larutan *PVA* 5 %w/w sebagai stabilizer dan disonofikasi selama 2 menit atau ditambahkan waktu 2 menit lagi bila perlu hingga terbentuk emulsi.

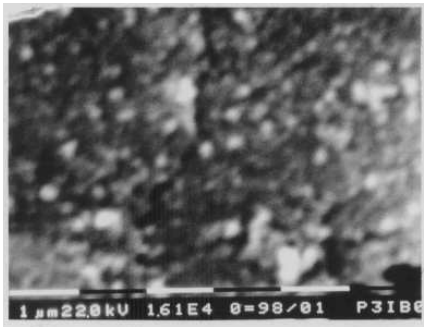
Proses ketiga adalah proses evaporasi (penguapan). Emulsi yang terbentuk pada proses kedua dituangkan ke dalam 300 mL air sambil diaduk dengan kecepatan 1000 *rpm* selama 1 jam sehingga kloroform menguap dan terbentuk butiran yang tersebar dalam air.

Selanjutnya larutan diendapkan selama 1 hari dan endapan dipisahkan serta dipanaskan 50 ^oC selama 1 jam. Serbuk yang diperoleh selanjutnya dikarakterisasi fasa dengan *X-Ray Diffractometer* (*XRD*), distribusi ukuran dengan *Scanning Electron Microscope* (*SEM*) dan sifat magnetiknya dengan *Vibrating Sample Magnetometer* (*VSM*).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil *SEM* dan Analisis Distribusi Ukuran

Secara umum, dari pengamatan, terlihat bahwa proses pembasahan sebagai proses awal pelapisan sangat menentukan distribusi ukuran pelapisan nano partikel. Pada proses ini terjadi pemisahan serbuk oksida Fe dalam ukuran nano partikel yang cenderung membentuk agregat dengan interaksi antar partikel yang cukup kuat. Pembentukan agregat ini terlihat pada hasil foto *SEM* serbuk nano partikel oksida Fe awal yang ditampilkan pada Gambar 1 dengan ukuran agregat bisa mencapai orde mikrometer meski data bahan menyatakan ukuran partikel tunggal adalah 10 nm hingga 20 nm.



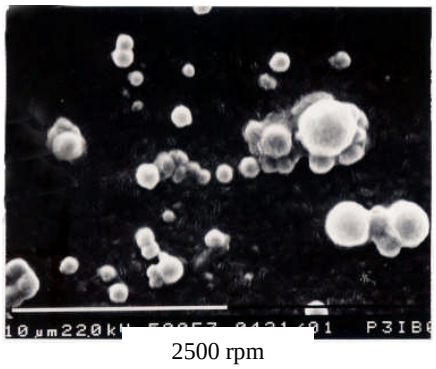
Gambar 1. Foto *SEM* nano partikel oksida besi sebelum proses pelapisan

Pada proses pembasahan diharapkan terjadi pemisahan agregat serbuk ini sampai sekecil mungkin dengan memvariasikan kecepatan aduk dan mengencerkan larutan pembasah *PLA* dengan menambah jumlah kloroform. Distribusi nanopartikel oksida besi terlapis *PLA* untuk berbagai kecepatan aduk dan penambahan kloroform ini diperlihatkan pada hasil foto *SEM* pada Gambar 2 dan Gambar 3.

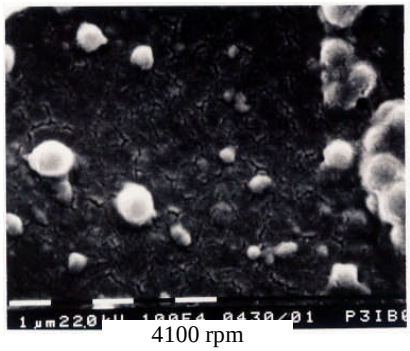
Dari foto *SEM* terlihat bahwa kenaikan kecepatan pengadukan awal kurang signifikan pengaruhnya pada distribusi akhir ukuran partikel, meski secara lebih detail dapat dikatakan bahwa makin cepat pengadukan ukuran partikel cenderung

Edisi Khusus Oktober 2007, hal : 156 - 161
ISSN : 1411-1098

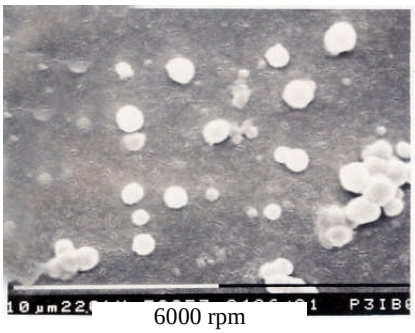
lebih homogen dan akhirnya akan menuju nilai ukuran nano partikel stabil. Hal ini didukung pengamatan pada proses pembuatan dimana larutan nano partikel *PLA* kloroform cenderung lebih homogen dan tidak terlihat gumpalan-gumpalan berukuran besar. Analisis ini sejalan dengan hasil pada referensi [6] yang membahas efek kecepatan putaran pengaduk (*mixer*) pada ukuran mikrosfer *PLA*, dimana ukuran mikrosfer *PLA* stabil pada kisaran 1,5 um sampai kecepatan 10000 *rpm*.



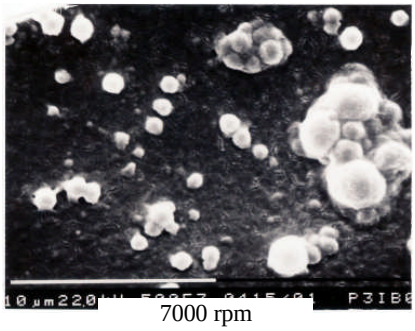
2500 rpm



4100 rpm

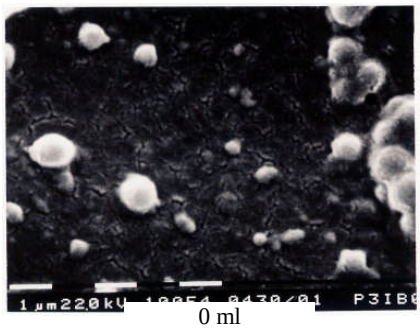


6000 rpm

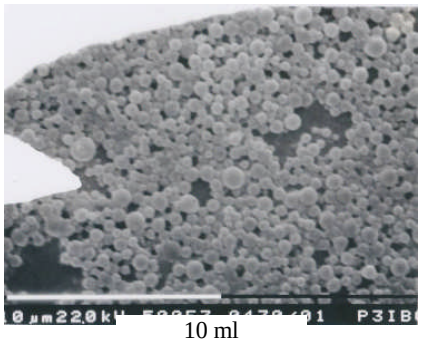


7000 rpm

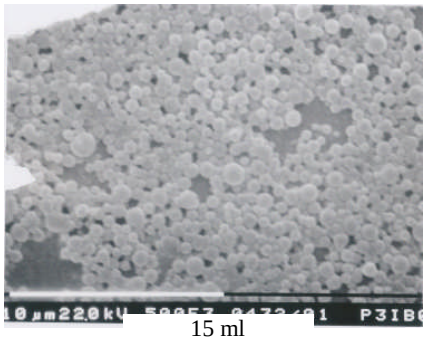
Gambar 2. Foto *SEM* nano partikel oksida Fe terlapis *PLA* pada berbagai kecepatan aduk



0 ml



10 ml



15 ml

Gambar 3. Foto *SEM* nano partikel oksida Fe terlapis *PLA* pada berbagai penambahan kloroform

Berbeda halnya dengan penambahan kloroform. Makin banyak kloroform yang ditambahkan makin kecil dan homogen distribusi ukuran nano partikel oksida Fe terlapis *PLA* yang terbentuk. Pengenceran yang mengakibatkan kenaikan volum larutan memberikan cukup ruang bagi serbuk untuk terpisah satu sama lain dalam proses pengadukan.

Selanjutnya dalam proses emulsifikasi dengan penggetar ultrasonik, gelembung kavitasi yang terbentuk akan makin kecil dan homogen. Hal ini sesuai dengan pembahasan relasi antara gelembung kavitasi dan viskositas pada referensi [7,8] yang diformulasikan pada parameter bilangan *Reynold*, (R_e) yaitu :

$$R_e = D_I V_{im} \rho_{em} / v_{em})$$

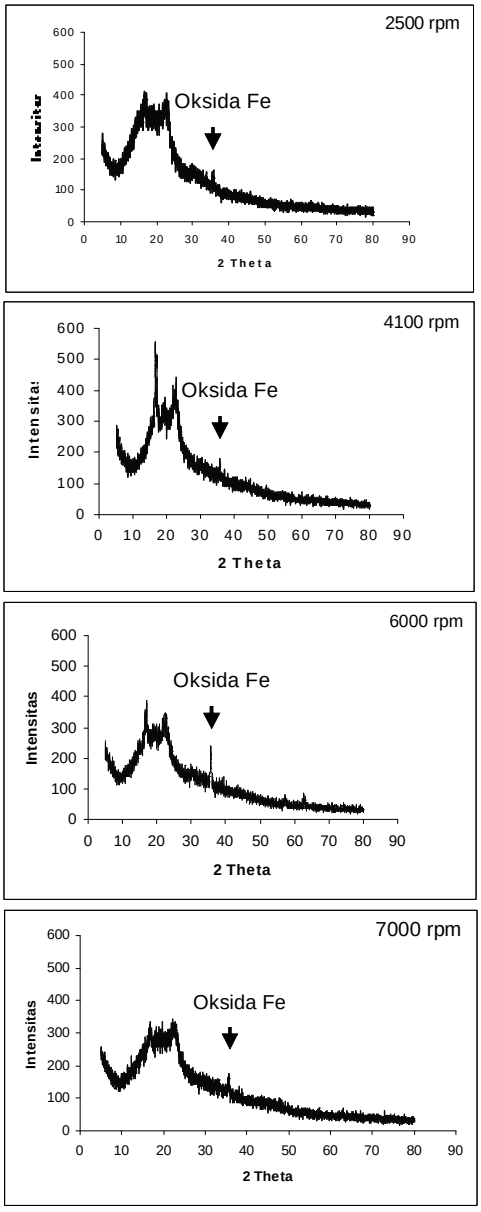
Dimana :

D_I = Diameter impelar pengaduk
V_{im} = Kecepatan pengaduk
ρ_{em} = Kerapatan emulsi
v_{em} = Viskositas emulsi

Namun demikian penambahan kloroform ini akan dibatasi oleh perbandingan volume minyak dan air. Agar emulsi minyak dalam air terbentuk dengan sempurna maka volume air sebagai matriks harus lebih besar dibanding volume minyak yang akan terdispersi dalam bentuk gelembung minyak dalam fasa air. Pada pengamatan yang dilakukan dengan fasa minyak dan air pada volume yang sama, emulsi tidak dapat terbentuk dan kedua fasa tetap terpisah satu sama lain.

Pola Difraksi Sinar-X dan Analisis Fasa

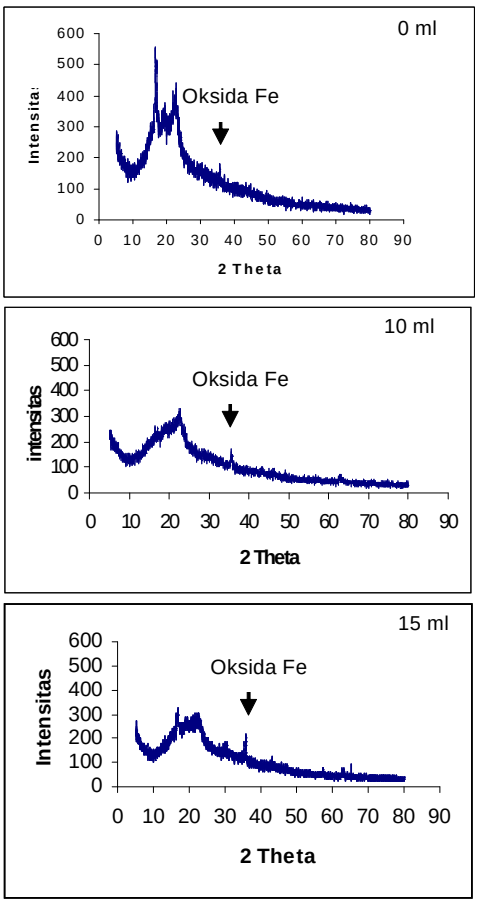
Pola difraksi sinar-X dari partikel terlapis dengan berbagai parameter di atas diperlihatkan pada Gambar 4 dan Gambar 5.



Gambar 4. Pola difraksi sinar-X nano partikel oksida Fe terlapis *PLA* pada berbagai kecepatan aduk

Pola diatas menunjukkan hadirnya fasa *PLA* (pada sudut 16,91 º dan 22,79 º), *PVA* (pada sudut 19 º) dan fasa oksida Fe (Fe_3O_4/γ-Fe_2O_3). Kecepatan pengadukan mempengaruhi derajat kristalinitas fasa *PLA* yang cenderung makin amorf dengan makin tingginya kecepatan adukan. Hal ini dapat dimengerti mengingat *PLA*, sebagaimana bahan polimer lainnya mempunyai suhu transisi fasa yang cukup rendah (156 ºC) [9], akan cenderung mengalami perubahan fasa dengan makin besarnya energi dari proses pengadukan yang makin cepat. Hasil ini dapat dianalogkan dengan turunnya derajat kristalinitas *PLA* dengan makin lamanya waktu proses sonofikasi yang juga terkait dengan makin besarnya energi proses seperti yang dibahas pada referensi [9].

Sedangkan pengenceran larutan lebih mengakibatkan makin homogennya ketebalan lapisan fasa *PLA* yang mengungkung nano partikel untuk emulsi yang makin encer. Kehadiran fasa *PVA* menunjukkan *PVA* dalam proses evaporasi belum tercuci secara sempurna yang juga terepresentasi dalam foto *SEM* diatas dalam bentuk partikel yang menggumpal dalam kungkungan *PVA*.



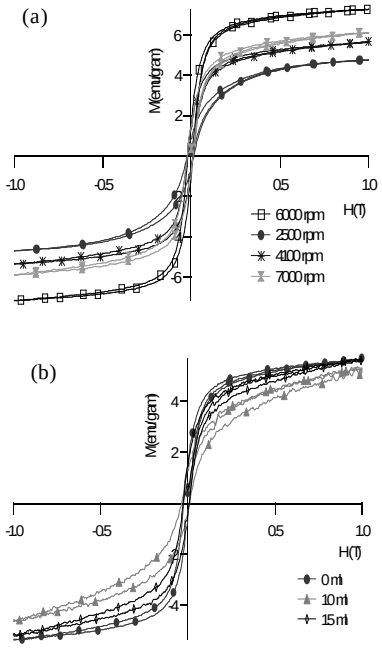
Gambar 5. Pola difraksi sinar-X nano partikel oksida Fe terlapis *PLA* pada berbagai penambahan kloroform

Kurva Histeresis dan Analisis Sifat Magnetik

Kurva histeresis magnetik selengkapnya dari nano partikel terlapis diberikan pada Gambar 6. Sumbu Y disini menyatakan momen magnetik yang dimiliki oleh

Edisi Khusus Oktober 2007, hal : 156 - 161
ISSN : 1411-1098

1 gram nano partikel terlapis *PLA*. Mengacu pada pengamatan selama proses pelapisan, terlihat bahwa tak semua nano partikel magnetik dapat terkungkung oleh PLA. Hal ini akan menurunkan faktor pengisian (*loading factor*) oksida Fe dalam *PLA* yang pada akhirnya akan menurunkan juga nilai momen magnetik nano partikel terlapis. Variasi pengadukan cenderung lebih mempengaruhi pengisian ini dibanding variasi penambahan kloroform. Nilai momen magnet saturasi, M_s dan medan koersiv, H_c dari berbagai variasi cuplikan ini diberikan pada Tabel 1.



Gambar 6. Kurva histeresis magnetik nano partikel oksida besi terlapis *PLA* pada berbagai kecepatan aduk (a) dan penambahan kloroform (b)

Tabel 1. Nilai momen magnet jenuh/saturasi, M_s dan medan koersivitas, H_c dari berbagai variasi cuplikan

Parameter	Harga	M_s (emu/gram)	H_c (Oe)
Kecepatan Aduk	2500 rpm	4,76	183
	4100 rpm	5,62	175
	6000 rpm	7,27	135
	7000 rpm	6,10	157
Penambahan Kloroform	0 ml	5,62	175
	10 ml	5,29	225
	15 ml	5,61	175

Faktor pengisian tertinggi dicapai pada kecepatan pengadukan 6000 *rpm* dengan harga pengisian mencapai 40% dari nilai pengisian awal. Penurunan pengisian pada *rpm* yang lebih tinggi lebih disebabkan sulitnya penanganan pengadukan pada kecepatan yang makin tinggi. Hal ini menjadi alasan dilakukannya pengadukan pada kecepatan 4100 *rpm* pada variasi penambahan kloroform dan bukan pada kecepatan 6000 *rpm* yang memberikan hasil lebih baik.

Mengacu pada pembahasan sebelumnya secara umum kecepatan pengadukan akan menentukan seberapa besar dan homogen agregat nanopartikel yang terbentuk dan selanjutnya terlapisi oleh *PLA* sedangkan pengenceran mempengaruhi seberapa tebal dan homogen lapisan *PLA* yang akan mengungkung agregat nano partikel tersebut. Sehingga untuk mendapatkan nano partikel dengan ukuran sekecil mungkin namun dengan sifat magnetik tetap tinggi diperlukan proses pengadukan dengan kecepatan tinggi yang stabil dengan kekentalan larutan pelapis rendah. Selain itu perbandingan fraksi volume antara oksida besi dan *PLA* harus tinggi namun dengan tetap mempertimbangkan kestabilan pelapisan *PLA*.

KESIMPULAN

Secara umum, telah dilakukan proses pelapisan nano partikel oksida Fe dengan polimer *PLA* dengan memvariasikan kecepatan proses pengadukan dan kekentalan larutan pelapis. Hasil pelapisan menunjukkan kecilnya ukuran serta distribusi ukuran nano partikel terlapis lebih ditentukan oleh kekentalan larutan pelapis. Sedangkan kecepatan adukan lebih cenderung mempengaruhi besar serta kehomogenan nano partikel oksida Fe yang terkungkung dalam *PLA*.

Dalam variasi parameter proses yang dilakukan, kecepatan pengadukan 6000 *rpm* memberikan hasil terbaik. Sedangkan penambahan kloroform sampai 15 mL (perbandingan volume minyak dan air 2 : 5), masih memberikan efek penurunan ukuran partikel dengan tingkat homogenitas distribusi ukuran partikel terlapis yang lebih baik. Untuk mengoptimalkan hasil yang diperoleh pada kegiatan ini, kegiatan akan dilanjutkan dengan pengadukan memakai fasilitas *mixer* pengaduk yang lebih stabil pada kecepatan tinggi dan juga dengan perbandingan volume oksida besi dan *PLA* yang lebih tinggi.

DAFTAR ACUAN

[1]. R. SKOMSKI, *J. Phys. Condens. Matter,* **15** (2003) R841-R896

[2]. Q.A. PANKHURST, J. CONNOLLY, S.K. JONES and J. DOBSON, *J. Phys. D: Appl. Phys.,* **36** (2003) R167 – R181

[3]. NEIL GORDON and URI SAGMAN, *Nanomedicine Taxonomy: Briefing Paper February 2003***,** Canadian NanoBusiness Alliance

[4]. SANJEEB K. SAHOO and VINOD LABHASETWAR, *Drug Discovery Today,* **8** (24) (2003) 1112 - 1120

[5]. PEDRO TARTAJ, MARIA del PUERTO MORALES, SABINO VEINTERMILLAS-VERDAGNER, TERESITA GONZALES-CARRENO and CARLOS J. SERNA, *J. Phys. D: Appl. Phys.,* **36** (2003) R182 – R197

[6]. LIM CHANG MOU, *Synthesis and Characterisation of Poly (Lactic Acid) Micro/ Nanospheres for Potential Drug Delivery*, (http://staff.science.nus.edu.sg/~scilooe/srp_2003/sci_paper/mat_Sci/ research_paper/lim_chang_mou.pdf), 15 Januari (2007)

[7]. BRIAN D. STOREY and ANDREW J. SZERI, *Proc. R. Soc. Lond. A*, **457** (2001) 1685-1700

[8]. S.J. LEE, J.R. JEONG, S.C. SHIN, J.C. KIM, Y.H. CHANG, K.H. LEE and J.D. KIM, *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, **255** (2005) 19-25

[9]. N. ARIYANDI, SUDARYANTO, M. KURNIATI, *MUJAMILAH* dan ARI H., *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **8** (2) (2007) 182-186