

Studi Awal Sintesis Partikel Gadolinium Karbonat ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) Menggunakan Metode Solvotermal

Erika L. Y. Nasution¹, Atika Ahab^{1,2}, Ferry Iskandar^{1,3,a)}, Akfyny H. Aimon¹
Khairurrijal¹, dan Mikrajuddin Abdullah¹

¹Laboratorium Material Energi dan Lingkungan,
Kelompok Keilmuan Fisika Material dan Elektronik,
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Bandung,
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

²Laboratorium Fisika Biofisika,
Kelompok Keilmuan Fisika Nuklir dan Biofisika,
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Bandung,
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

³Research Center for Nanoscience and Nanotechnology,
Institut Teknologi Bandung,
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

a) ferry@fi.itb.ac.id (corresponding author)

Abstrak

Partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) telah berhasil disintesis dengan metode solvotermal. Prekursor gadolinium asetat hidrat ($Gd(CH_3CO_2)_3 \cdot xH_2O$) didekomposisi dalam medium PEG-1000 cair pada suhu $180^\circ C$. Hasil dekomposisi solvotermal tersebut menghasilkan partikel bubuk $Gd_2(CO_3)_3@PEG$. Analisis ukuran, morfologi, dan gugus fungsi partikel dilakukan dengan menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), Electron Dispersive Spectrometry (EDS), dan Fourier Transform Infrared spectroscopy (FTIR). Spektrum XRD sampel produk solvotermal menunjukkan bahwa produk sintesis adalah $Gd_2(CO_3)_3$ dan memiliki simetri heksagonal sesuai dengan database JCPDS No 37-0559. Dari data SEM diperoleh partikel $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ beraglomerasi berukuran mikro dan hasil EDS diperoleh elemen-elemen penyusun $Gd_2(CO_3)_3$. Karakterisasi FTIR pada sampel $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ menunjukkan bahwa PEG terikat pada permukaan partikel magnetik sebagai gugus karbonil dan hidroksil. Dengan demikian pada sintesis ini kami telah berhasil mentransfer sifat hidrofilik PEG sehingga partikel berbasis gadolinium yang dihasilkan dapat difungsionalkan.

Kata-kata kunci : Gadolinium karbonat, metode solvotermal, PEG

PENDAHULUAN

Perkembangan material magnetik pada dekade terakhir ini semakin bervariasi, baik secara ilmiah maupun pengembangan aplikasi. Saat ini, partikel magnetik (MPs) dengan modifikasi permukaan yang tepat telah banyak digunakan untuk berbagai aplikasi seperti di biomedis. Pada bidang biomedis digunakan partikel paramagnetik atau superparamagnetik untuk pemisahan sel, peningkatan agen kontras *Magnetic Resonance Imaging* (MRI), memperbaiki jaringan, hipertermia, dan target pemberian obat [1-4].

Gadolinium adalah logam tanah jarang yang memiliki sifat paramagnetik yang dapat meningkatkan sinyal *Resonansi Magnetic Imaging* (MRI). Ion gadolinium (Gd^{3+}) memiliki tujuh elektron yang tidak berpasangan pada kulit valensi, sehingga hal ini memiliki momen magnetik yang cocok untuk MRI.

Beberapa bentuk senyawa dari gadolinium adalah gadolinium oksida (Gd_2O_3), gadolinium hidroksida ($Gd_2(OH)_2$), dan gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3$) [5]. Partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3$) memiliki kelebihan dibandingkan dengan senyawa gadolinium lain proses sintesisnya lebih mudah, cepat, dan menggunakan prekursor yang lebih sedikit. Akan tetapi, partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3$) memiliki sifat kelemahan karena mengandung *toxic*, untuk menghilangkan sifat *toxic* dilakukan proses *coating* dengan polimer yang dapat menghilangkan sifat tersebut. Partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3$) *dicoating* dengan polietilen glikol (PEG-1000). PEG-1000 berfungsi sebagai template yang menentukan bentuk partikel, sehingga menjadi berbentuk bulatan yang seragam, dapat larut, dan membentuk lapisan partikel biokompatibel. Partikel $Gd_2(CO_3)_3$ difungsionalisasikan dengan PEG menghasilkan ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) yang bersifat biokompatibel dan monodispersi.

Senyawa gadolinium karbonat $Gd_2(CO_3)_3$ sudah banyak disintesis dengan menggunakan metode presipitasi homogen [6] dan reaksi kristalisasi [7]. Metode ini memiliki kekurangan karena coatingan partikel dilakukan setelah partikel disintesis (*post synthesis*), sehingga memerlukan proses sintesis yang lama.

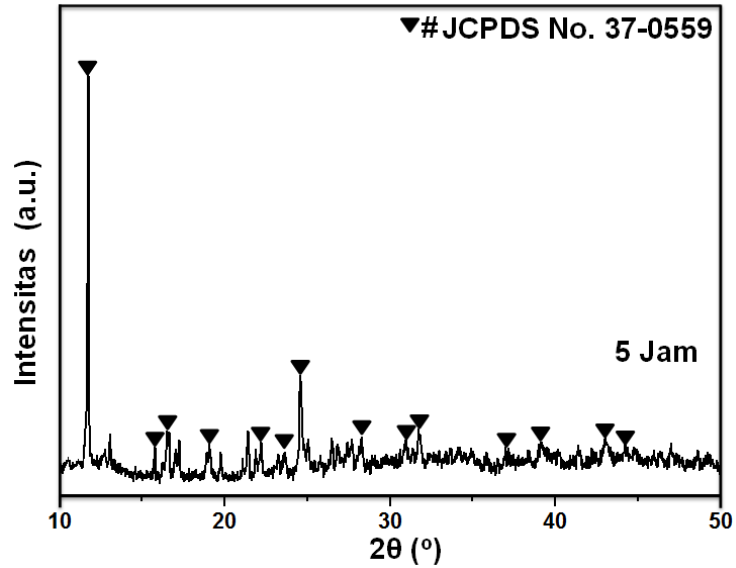
Salah satu cara untuk sintesis partikel dengan *coating in-situ* dapat dilakukan dengan metode solvotermal. Metode solvotermal adalah metode umum yang digunakan dalam sintesis partikel untuk kebutuhan biomedis karena menggunakan prekursor organometalik dan surfaktan polimer. Akan tetapi sampai saat ini penelitian terkait pembuatan ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) menggunakan metode solvotermal masih sangat sedikit. Oleh karena itu, dalam penelitian ini kami melakukan sintesis ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) dengan menggunakan metode solvotermal dan melakukan karakterisasi pada sampel yang dibuat. PEG di sini digunakan sebagai pelarut untuk mengatur ukuran dan membantu kristalinisasi partikel selama dekomposisi prekursor gadolinium asetat hidrat.

METODOLOGI PENELITIAN

Material dasar yang digunakan dalam sintesis partikel adalah gadolinium asetat hidrat ($Gd(CH_3CO_2)_3 \cdot XH_2O$, Aldrich), polietilen glikol (PEG-1000, MW = 1000, Merck). Pada umumnya, 40 g polietilen glikol dicairkan pada suhu $50^\circ C$, kemudian dicampurkan 3,6 mmol gadolinium asetat hidrat ($Gd(CH_3CO_2)_3 \cdot XH_2O$) sampai larutan bercampur homogen. Setelah terbentuk larutan putih, larutan dipindahkan ke teflon autoklaf pada suhu ruang, autoklaf ditutup dan diatur sampai suhu $180^\circ C$ selama 5 jam. autoklaf didinginkan sampai suhu $60^\circ C$. Kemudian ditambahkan larutan 60 mL aseton dan 3 mL heksana. Kemudian dilakukan pencucian selama beberapa kali. Endapan yang diperoleh dimasukkan ke dalam oven untuk proses pengeringan. Sehingga, diperoleh serbuk partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$). Partikel gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) dikarakterisasi dengan menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) *Philips Analytical* dengan tipe difraktometer PW1710 BASED dengan step size $0,02^\circ$ pada radiasi $Cu K\alpha$ ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$), *Fourier Transform Infra-Red spectroscopy* (FTIR) menggunakan *Alpha FTIR Spectrometer Bruker 1 176 396*, *Scanning Electron Microscopy* (SEM) menggunakan SEM tipe JEOL-JSM-6510LA pada tegangan operasi 15 kV, dan *Electron Dispersive X-Ray Spectroscopy*.

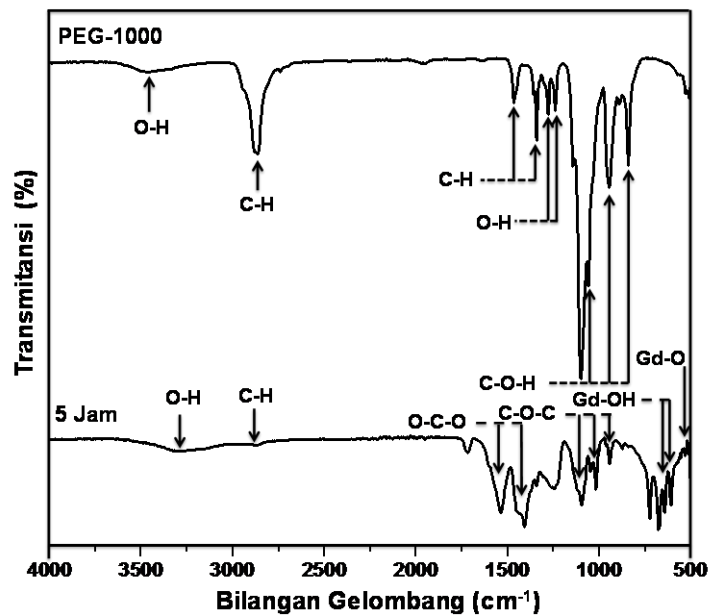
HASIL DAN DISKUSI

Gambar 1 menunjukkan pola XRD pada gadolinium karbonat ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) untuk pemanasan selama 5 jam. Pola XRD menunjukkan ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) dengan simetri heksagonal dan cocok pada JCPDS No. 37-0559 [8]. Dengan menggunakan persamaan Scherrer diperoleh ukuran kristal partikel 17,1 nm.



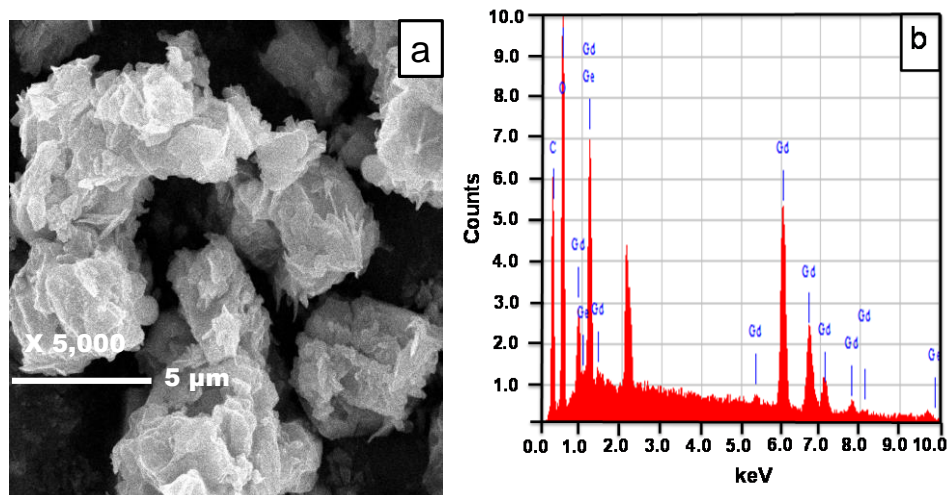
Gambar 1. Pola XRD ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) untuk pemanasan 5 jam

Spektrum FTIR pada ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) ditunjukkan pada Gambar 2. Spektrum FTIR menunjukkan ikatan-ikatan yang terbentuk merupakan ikatan pembentuk partikel ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$). Ikatan yang menunjukkan keterbentukan PEG pada permukaan partikel $Gd_2(CO_3)_3$ ditunjukkan dengan terbentuk ikatan O-C-O dan O-H yang merupakan grup hidroksil dan karbonil [9]. Pada puncak absorbansi yang muncul di bilangan gelombang 652 dan 674 cm^{-1} menunjukkan ikatan Gd-OH dan 532 cm^{-1} menunjukkan ikatan Gd-O [10,11].



Gambar 2. Spektrum FTIR dari partikel ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) untuk pemanasan 5 jam

Gambar 3 (a) menunjukkan hasil karakterisasi SEM dari partikel ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) untuk pemanasan 5 jam. Hasil karakterisasi SEM menunjukkan morfologi partikel ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$) beraglomerasi dan ukuran partikel pada skala mikrometer. Hasil karakterisasi EDS diperlihatkan pada Gambar 3 (b) yang menunjukkan adanya elemen-elemen seperti Gd, C, dan O. Elemen-elemen tersebut merupakan elemen penyusun partikel ($Gd_2(CO_3)_3@PEG$).



Gambar 3. (a) Hasil karakterisasi SEM dan (b) Hasil karakterisasi EDS dari partikel $(\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3@\text{PEG})$

KESIMPULAN

Pada penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa partikel $(\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3@\text{PEG})$ telah berhasil disintesis dengan metode solvotermal. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa partikel $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3$ berhasil disintesis dengan ditandai kesesuaian spektrum XRD sampel dengan spektrum dari database JCPDS# 37-0559. Spektrum FTIR menunjukkan bahwa $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3@\text{PEG}$ telah terbentuk dengan ditandai PEG terikat pada permukaan partikel magnetik $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3@\text{PEG}$ sebagai gugus karbonil dan hidroksil. Hasil analisis SEM menunjukkan bahwa partikel $(\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3@\text{PEG})$ beraglomerasi berukuran mikro dan hasil analisis EDS menunjukkan elemen-elemen penyusun $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3$.

UCAPAN TERIMAKASIH

Peneliti menyampaikan ucapan terimakasih atas bantuan dana penelitian kepada, Institut Teknologi Bandung – Riset Inovasi ITB Tahun dan bantuan alat dari TWAS.

REFERENSI

1. Ahmad, M.W., et al., Potential Dual Imaging Nanoparticle: Gd_2O_3 Nanoparticle. *Sci Rep*, 2015. **5**: p. 8549.
2. Bulte, J.W. and D.L. Kraitchman, Iron oxide MR contrast agents for molecular and cellular imaging. *NMR Biomed*, 2004. **17**(7): p. 484-99.
3. Gupta, A.K. and M. Gupta, Synthesis and surface engineering of iron oxide nanoparticles for biomedical applications. *Biomaterials*, 2005. **26**(18): p. 3995-4021.
4. Na, H.B., et al., Development of a T1 contrast agent for magnetic resonance imaging using MnO nanoparticles. *Angew Chem Int Ed Engl*, 2007. **46**(28): p. 5397-401.
5. Park, Yong, I., et al., Effects of Urea Concentration and Reaction Temperature on Morphology of Gadolinium Compounds Prepared by Homogeneous Precipitation. *Materials Chemistry and Physics*, 2007. **106** (2007): p.149-157.
6. Xin, K., H., Dongmin, S., and Woo, S., K., Synthesis of Nanocrystals of Gadolinium Carbonate by Reaction Crystallization. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 2012, Vol. 12, Hal 2367-2373.
7. Wu, Y., et al., A New Type of Silica-Coated $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3:\text{Tb}$ nanoparticle as a Bifunctional Agent for Magnetic Resonance Imaging and Fluorescent Imaging. *Nanotechnology*, 2012, 23(2012) 205103.
8. Jin, Li-Na, Liu, Q., and Sun, Wei-Yin, Synthesis and Photoluminescence of Octahedral GdVO_4 Microcrystals by Hydrothermal Conversion of $\text{Gd}_2(\text{CO}_3)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ Nanospheres. *Solid State Sciences* 19 (2013), p. 45-50.
9. Shameli, K., et al., Synthesis and characterization of polyethylene glycol mediated silver nanoparticles by the green method. *Int J Mol Sci*, 2012. **13**(6): p. 6639-50.

10. Liu, G., et al., Solvothermal synthesis of Gd₂O₃:Eu³⁺ luminescent nanowires. Journal of Nanomaterials, 2010.
11. Guo H., Yang X, Xiao T., Zhang W., Lou L., Mugnier J., Structure and optical properties of sol-gel derived Gd₂O₃ waveguide films. Appl Surf Sci, 2004. **230** (1-4): p. 215-221.