

## ANALISIS KARAKTERISASI XRD SINTESIS GADOLINIUM KARBONAT ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) DENGAN METODE SOLVOTERMAL

Erika Linda Yani Nasution<sup>1\*</sup>, Surya Handayani<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Program Studi Agroteknologi, Fakultas Pertanian, Universitas Graha Nusantara, Padangsidempuan, 22733, Indonesia

\*e-mail: erika.lindanst@gmail.com

### ABSTRAK

Telah dilakukan sintesis partikel pegilasi gadolinium karbonat dengan metode solvotermal menggunakan prekursor polietilen glikol (PEG-1000) dan gadolinium asetat hidrat ( $Gd(CH_3CO_2)_3$ ) pada suhu  $180^\circ C$  dengan waktu pemanasan selama 3 jam, 5 jam, dan 7 jam. Partikel pegilasi gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) tersebut selanjutnya dianalisis pola difraksi dan bentuk struktur dengan menggunakan X-Ray Diffraction (XRD). Hasil karakterisasi spektrum XRD terhadap partikel  $Gd_2(CO_3)_3$  menunjukkan pola difraksi dengan posisi puncak-puncak difraksi bersesuaian dengan JCPDS No. 37-0559 dengan puncak utama pada  $2\theta = 11.75^\circ$ . Pada waktu pemanasan 3 jam, sampel memiliki sifat amorf, sedangkan pada sampel waktu pemanasan 5 jam dan 7 jam sampel-sampel memiliki derajat kekristalan yang baik. Pada waktu pemanasan 5 jam lebih tinggi kristalisasinya daripada 7 jam yang mengindikasikan kualitas kristal lebih baik pada lama pemanasan 5 jam.

Kata kunci : Gadolinium Karbonat; Metode Solvotermal; PEG; XRD

### ABSTRACT

**[Title: Analysis of XRD Characterization of Gadolinium Carbonate ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) Synthesis by Solvothermal Method]** Synthesis of pegylated gadolinium carbonate particles by solvothermal method using polyethylene glycol (PEG-1000) and gadolinium acetate hydrate ( $Gd_2(CH_3CO_2)_3$ ) precursors at  $180^\circ C$  with heating time for 3 hours, 5 hours and 7 hours. The gadolinium carbonate ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) particle pegylation was further analyzed by diffraction patterns and structural shapes using X-Ray Diffraction (XRD). The results of XRD spectrum characterization of  $Gd_2(CO_3)_3$  particles showed diffraction pattern with diffraction peaks position corresponds to JCPDS No. 37-0559 with the main peak at  $2\theta = 11.75^\circ$ . At 3 hours of heating, the sample has amorphous properties, while the sample heating time is 5 hours and 7 hours the samples have a good degree of crystallization. 5 hours higher crystallization than 7 hours which indicates better crystal quality at 5 hours heating time.

Keywords: Gadolinium Carbonate; Solvothermal Method; PEG; XRD

## PENDAHULUAN

Gadolinium merupakan unsur golongan lantanida yang memiliki tujuh elektron valensi dan sering digunakan sebagai agen kontras karena memiliki momen magnet yang besar, yakni 7,94 J/T (Hyon, 2009). Sifat gadolinium yang memiliki sifat paramagnetik terbesar diantara unsur lantanida sangat baik dalam meningkatkan sinyal resonansi MRI (Hyon, 2009). Senyawa anorganik gadolinium yang sering digunakan sebagai agen kontras antara lain gadolinium oksida ( $Gd_2O_3$ ), gadolinium hidroksida ( $Gd_2(OH)_2$ ), dan gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3$ ) (Park, 2007). Diantara senyawa-senyawa tersebut, gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3$ ) memiliki kelebihan yakni proses sintesis lebih mudah, cepat, menggunakan prekursor yang lebih sedikit (Hyon, 2009, Wu, 2012), dan dapat digunakan secara langsung sebagai prekursor untuk sintesis partikel gadolinium oksida ( $Gd_2O_3$ ) (Park, 2007). Senyawa  $Gd_2O_3$  memiliki sifat paramagnetik terbesar diantara semua logam oksida (Söderlind, 2008) dan sangat potensial sebagai agen kontras karena kemampuannya dalam meningkatkan kontras citra MRI sangat besar dengan pemberian konsentrasi senyawa yang kecil.

Partikel gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3$ ) sendiri memiliki sifat beracun. Ketika digunakan dalam aplikasi biomedis sehingga harus ditransfer dalam bentuk yang biokompatibel. Selain itu, dispersibilitas partikel magnetik dalam air pada nilai pH yang berbeda dan pelarut lain, kristalinitas, bentuk dan ukuran homogen, difungsionalisasi, dan *coating* biokompatibel perlu diperhatikan dalam sintesis kimia dari  $Gd_2(CO_3)_3$ .

Untuk tujuan tersebut terdapat dua metode yang digunakan untuk memfungsionalisasikan partikel magnetik untuk aplikasi biomedis yakni dengan metode pertukaran ligan dan enkapsulasi dengan kulit biokompatibel. Salah satu polimer yang dapat digunakan sebagai lapisan biokompatibel bagi partikel adalah senyawa kompleks polietilen glikol (PEG). Sebagai pelarut, PEG merupakan lingkungan liquid yang dapat mempengaruhi sifat-sifat dari partikel. PEG berfungsi sebagai template yang menentukan bentuk partikel, sehingga partikel berbentuk bulatan yang seragam, dapat larut, dan membentuk lapisan partikel biokompatibel (L. M. Hamming, 2008). PEG mencegah aglomerasi sehingga ukuran partikel berkurang dan distribusi ukuran dipertajam (Yu, 2012). Dengan demikian, partikel  $Gd_2(CO_3)_3$  difungsionalisasikan dengan PEG maka akan menghasilkan  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$  yang bersifat biokompatibel dan monodispersi.

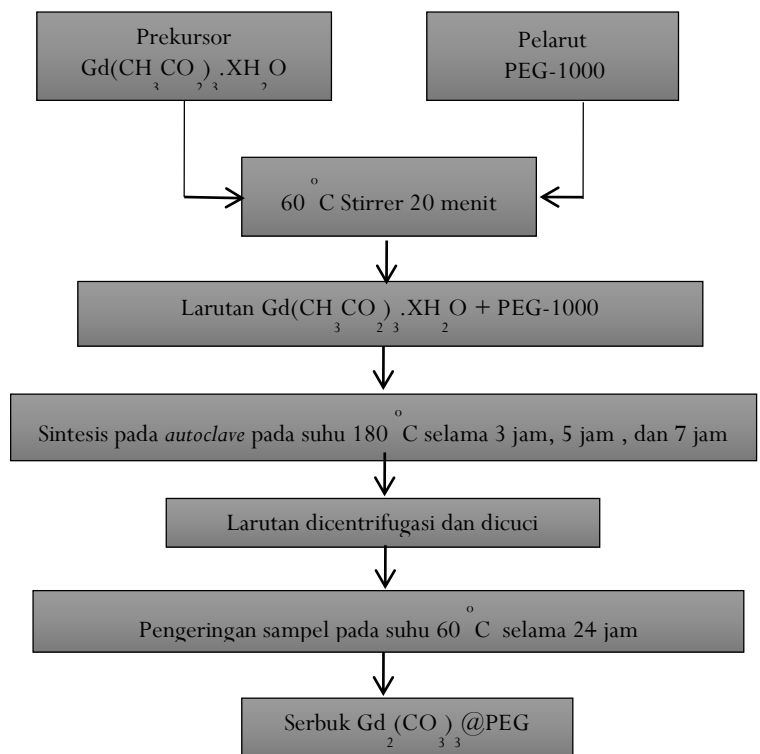
Untuk tujuan fabrikasi partikel dengan lapisan biokompatibel diperhatikan juga pemilihan metode

sintesis partikel dan teknik *coating* partikel dengan bahan biokompatibel. Hal tersebut dapat dilakukan baik secara *in-situ* (saat sintesis) dan *post synthesis* (setelah sintesis) perlu dilakukan (Gonalves, Cardoso dkk., 2010, Cao, Zhang dkk., 2012). Proses sintesis dengan metode *coating post synthesis* merupakan proses dengan waktu lama dan *reagent* serta partikel yang dihasilkan setelah *treatment* hanya dapat terlarut pada pelarut tertentu saja (Cao, Zhang dkk., 2012).

Dalam penelitian ini dilakukan metode solvothermal terhadap prekursor gadolinium asetat hidrat ( $Gd(CH_3CO_2)_3 \cdot XH_2O$ ) dan polietilen glikol (PEG-1000) untuk menghasilkan partikel  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ . Kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan *X-Ray Diffractometer* (XRD) untuk mengetahui pola difraksi dan bentuk struktur.

## METODOLOGI PENELITIAN

Material dasar yang digunakan dalam pembuatan material  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$  adalah gadolinium asetat hidrat ( $Gd(CH_3CO_2)_3 \cdot XH_2O$ , Aldrich), polietilen glikol (PEG-1000, MW = 1000, Merck). Pada Gambar 1 menunjukkan skema untuk sintesis  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ .



**Gambar 1.** Skema sintesis  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$

Polietilen glikol (PEG-1000) dan gadolinium asetat hidrat ( $Gd(CH_3CO_3)_3$ ) ditumbuhkan secara *in-situ*. PEG-1000 sebagai pelarut sebanyak 40 gram

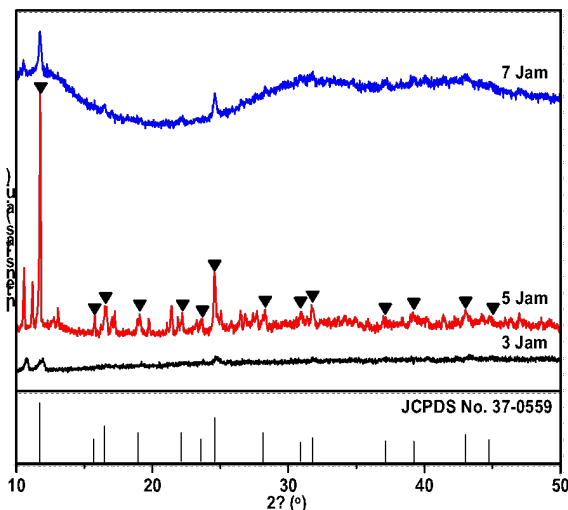
dicairkan pada suhu 60°C selama 20 menit di dalam gelas *beaker*. Gadolinium asetat hidrat ( $Gd(CH_3CO_3)_3 \cdot xH_2O$ ) sebagai prekursor sebanyak 3,6 mmol ditambahkan ke dalam larutan PEG.

Larutan prekursor dipindahkan ke teflon *autoclave* pada temperatur ruang. Larutan dalam *autoclave* dipanaskan pada 180°C dengan variasi waktu sintesis selama 3, 5, dan 7 jam. Pada suhu ruang, larutan disentrifugasi dan dicuci beberapa kali dengan menggunakan aseton untuk menghilangkan kelebihan polimer.

Hasil endapan selanjutnya dimasukkan ke dalam oven untuk proses pengeringan pada suhu 60°C selama 24 jam. Setelah proses pengeringan diperoleh serbuk  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$  yang selanjutnya digerus dengan menggunakan penggerus dan mortal. Serbuk  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$  kemudian dikarakterisasi dengan XRD.

## HASIL DAN DISKUSI

Analisis spektrum XRD pada Gambar 2 menunjukkan pola difraksi gadolinium karbonat.



**Gambar 2.** Hasil XRD  $Gd_2(CO_3)_3@PEG$  pada suhu 180 °C dengan waktu pemanasan 3 jam, 5 jam dan 7jam.

Gambar 2 menunjukkan hasil XRD pada sampel pegilasi gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ). PEG-1000 memiliki pola difraksi dengan posisi puncak-puncak difraksi bersesuaian dengan JCPDS No. 37-0559 dengan puncak utama pada  $2\theta = 11.75^\circ$ . Data tersebut menyatakan terbentuknya senyawa gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3$ ) yang memiliki morfologi *rhombus* dengan fase kristal heksagonal (G.Devanand Venkatasubbu, 2013).

Pada waktu pemanasan 3 jam, sampel masih memiliki sifat amorf sedangkan pada sampel pemanasan 5 jam, dan 7 jam sampel-sampel memiliki derajat kekristalan yang baik. Akan tetapi, pada sampel yang dipanaskan selama 7 jam terlihat pelebaran spektrum difraksi yang dapat diakibatkan oleh jumlah kandungan air dan ikatan karbon yang lebih besar yang terkoordinasi menjadi molekul gadolinium karbonat (k. C. Patil, 1968, G. Tian, 2011).

Selain itu, dari Gambar 2 diperoleh kristalisasi pada metode dekomposisi solvotermal dengan lama pemanasan 5 jam lebih tinggi kristalinasinya daripada 7 jam yang mengindikasikan kualitas kristal lebih baik pada waktu pemanasan 5 jam.

## KESIMPULAN

Pegilasi gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) telah berhasil disintesis dengan metode dekomposisi solvotermal. Hasil spektrum XRD menunjukkan bahwa gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3@PEG$ ) telah terbentuk dengan pola difraksi yang sesuai dengan JCPDS No. 37-0559 dengan puncak utama pada  $2\theta = 11.75^\circ$  dan terbentuknya senyawa gadolinium karbonat ( $Gd_2(CO_3)_3$ ) yang memiliki morfologi *rhombus* dengan fase kristal heksagonal. Tingkat kekristalan untuk waktu pemanasan 5 jam lebih tinggi daripada 7 jam yang mengindikasikan kualitas kristal lebih baik pada waktu pemanasan 5 jam.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Direktorat Riset dan Pengabdian Masyarakat (DRPM), Kementerian Riset, Teknologi dan Pendidikan Tinggi melalui pembiayaan penuh lewat Program Hibah Kompetitif Nasional Dikti pada Pendanaan Tahun 2019.

## REFERENSI

- Cao, X., B. Zhang, F. Zhao, dan L. Feng (2012). Synthesis and properties of MPEG-coated superparamagnetic magnetite nanoparticles. *Journal of Nanomaterials*, **2012**.
- G. Devanand Venkatasubbu, S. R., V. Ramakrishnan, dan J. Kumar (2013). Folate Targeted PEGylated Titanium Dioxide Nanoparticles as a Nanocarrier for Targeted Paclitaxel Drug Delivery. *Advanced Powder Technology*, **24**, 7.

- Gonalves, R. H., C. A. Cardoso, dan E. R. Leite (2010). Synthesis of colloidal magnetite nanocrystals using high molecular weight solvent. *Journal of Materials Chemistry*, **20**, 1167-1172.
- G. Tian, Z. G., X. Liu, L. Zhou, W. Yin L. Yan, et al (2011). Facile Fabrication of Rare-Earth-Doped Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Hollow Spheres with Upconversion Luminescence, Magnetic Resonance, and Drug Delivery Properties. *The Journal of Physical Chemistry C*, **115**, 6.
- Hyon, B., Na, et al, (2009). Inorganic Nanoparticles for MRI Contrast Agents. *Adv. Mater*, **21**, 15.
- K. C. Patil, G. V. C., M. V. George, dan C. N. R. Rao (1968). Infrared Spectra and Thermal Decompositions of Metal Acetates and Dicarboxylates. *Canadian Journal of Chemistry*, **46**, 8.
- L. M. Hamming, a. P. B. M. (2008). Fouling Resistant Biomimetic Poly(Ethylene Glycol) Based Grafted Polymer Coatings. *Jour. Material Matters*.
- Park, Y., I., dkk., (2007). Effect of Urea Concentration and Reaction Temperature on Morfology of Gadolinium Compounds Prepared by Homogeneous Precipitation. *Material Chemistry and Physics*, **106**, 8.
- Söderlind, F. (2008). Colloidal Synthesis of Metal Oxide Nanocrystals and Thin Films. *Linköping Studies in Science and Technology Dissertation No. 1182*.
- Wu, Y. (2012). A New Type of Silica-Coated Gd<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>:Tb Nanoparticle as a Bifunctional Agent for Magnetic Resonance Imaging and Fluorescent Imaging. *Nanotechnology*, **23**.
- Yu, M. (2012). Dextran and Polymer Polyethylene Glycol (PEG) Coating Reduce Both 5 and 30 nm Iron Oxide Nanoparticle Cytotoxicity in 2D and 3D Cell Culture. *International Journal of Molecular Sciences*, **13**, 16.