



Penggunaan Ekstrak Air Daun Kopi Robusta (*Coffea robusta*) Dalam Sintesis Material $ZnAl_2O_4$ Dengan Metode Kopresipitasi

Eka Angasa^{1,*}, Maya Trisnawati¹, Irfan Gustian², Sal Prima Yudha S¹, Ghufira²

¹Laboratorium Kimia Anorganik, Prodi Kimia FMIPA, Universitas Bengkulu, Indonesia

²Laboratorium Kimia Fisik, Prodi Kimia FMIPA, Universitas Bengkulu, Indonesia

*eka.angasa@gmail.com

Diterima 15 November: Disetujui 02 Desember 2015

Abstrak - Telah disintesis $ZnAl_2O_4$ menggunakan ekstrak air daun kopi robusta (*Coffea robusta*) dengan metode kopresipitasi. Hasil penelitian menunjukkan bahwa ekstrak air daun kopi robusta berpengaruh terhadap kristalinitas, bentuk, dan ukuran kristal $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan. Berdasarkan hasil analisis XRD, kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang terbaik diperoleh dengan menggunakan massa ekstrak daun kopi 12 g pada suhu kalsinasi 800°C. Hasil analisis SEM menunjukkan bahwa bentuk partikel yang dihasilkan tidak homogen dengan ukuran yang bervariasi.

Keywords: *Coffea robusta*, kopresipitasi, $ZnAl_2O_4$, XRD, SEM

1. Pendahuluan

Green synthesis nanopartikel dengan memanfaatkan ekstrak tumbuhan telah banyak dilakukan. Penggunaan ekstrak tumbuhan dalam sintesis nanopartikel memiliki kelebihan diantaranya ramah lingkungan, dapat mereduksi ion logam menjadi oksida logam sehingga bebas dari senyawa beracun, dapat bertindak sebagai *capping agent* sehingga dapat mempengaruhi bentuk dan ukuran nanopartikel, dan dapat membantu proses pembentukan gel dalam sintesis [1]. Oleh karena itu, berbagai metode terus dikembangkan dalam sintesis nanopartikel dengan memanfaatkan ekstrak tumbuhan. Salah satu nanopartikel yang disintesis dengan menggunakan ekstrak tumbuhan adalah nanopartikel $ZnAl_2O_4$ dengan menggunakan ekstrak tumbuhan *Opuntia dillenii haw*. Ekstrak tanaman *Opuntia dillenii haw* mengandung senyawa *mucilage* dan pektin, yang memiliki kemampuan berikatan kimia dengan menangkap ion logam yang terlibat dan dapat menghambat pemisahan $ZnAl_2O_4$ [1]. Penelitian lainnya adalah sintesis $ZnAl_2O_4$ dengan menggunakan ekstrak daun pacar air (*Impatiens balsamina* L.) sebagai *capping agent* dengan metode kopresipitasi. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa kristalinitas $ZnAl_2O_4$ dengan menggunakan ekstrak lebih baik dibandingkan sintesis tanpa menggunakan ekstrak. Hasil analisis SEM menunjukkan bahwa $ZnAl_2O_4$

memiliki ukuran dan bentuk yang bervariasi dan tidak menunjukkan adanya agregat (gumpalan). Hasil ini dipengaruhi oleh kandungan senyawa yang terdapat pada ekstrak daun flavonoids, coumarins, saponins, phenolics, terpenoids, and steroids [2].

Sebagai upaya untuk mengembangkan sintesis nanomaterial menggunakan ekstrak tumbuhan, pada penelitian ini digunakan ekstrak ekstrak daun kopi. Daun kopi mengandung flavonoid, alkaloid, saponin, kafein, dan polifenol [3], sehingga daun kopi dapat digunakan dalam sintesis $ZnAl_2O_4$. Sejauh penelusuran literatur yang dilakukan ekstrak daun kopi belum pernah digunakan untuk sintesis nanopartikel $ZnAl_2O_4$. Selain itu, penelitian ini bertujuan untuk melihat pengaruh ekstrak tumbuhan kopi terhadap kristalinitas, bentuk, dan ukuran kristal $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan.

2. Metode Penelitian

Bahan yang digunakan adalah akua DM (Demineralisasi), $Zn(CH_3COO)_3 \cdot 2H_2O$ (kemurnian >99.5%), $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ (kemurnian $\geq 95\%$), dan NH_4OH 25% yang semuanya diproduksi oleh Merck. XRD yang digunakan adalah XRD produksi PAN-analytical PW3373 dengan menggunakan radiasi $K\alpha$ Cu $\lambda=0.154$ nm dengan kekuatan 40 kV and

30 mA. Mikrografi dari sampel dilakukan dengan SEM (JEOL, JSM 5360LA). Sampel daun kopi yang digunakan jenis robusta yang diambil dari Perkebunan Rakyat Desa Kabawetan, Kepahiang, Bengkulu.

Pembuatan Ekstrak Daun Kopi Robusta

Sampel daun kopi robusta yang segar ditimbang sebanyak 8 g, 12 g, dan 20 g, lalu dipotong kecil-kecil dan dihaluskan dengan lumpang dan alu. Masing-masing dimasukkan ke dalam gelas piala dan ditambahkan akua DM sampai volumenya 50 mL. Campuran diaduk dengan menggunakan *magnetic stirrer* selama 45 menit kemudian campuran disaring sehingga diperoleh filtrat. Ekstrak yang diperoleh digunakan untuk sintesis $ZnAl_2O_4$.

Sintesis $ZnAl_2O_4$ dengan Menggunakan Ekstrak Daun Kopi Robusta

Prosedur ini sama dengan prosedur yang dilakukan sebelumnya [2]. Sebanyak 25 mL $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ 1 M dan 50 mL $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ 1 M dicampur di dalam gelas piala 250 mL sambil diaduk dengan menggunakan *magnetic stirrer*. Kemudian ditambahkan 10 mL ekstrak daun kopi robusta dan distirer selama 5 menit. Lalu ditambahkan NH_4OH dengan diaduk perlahan hingga pH campuran menjadi 10-11. Campuran dipanaskan hingga suhu $80^\circ C$ dan diaduk selama 30 menit. Setelah pemanasan selesai campuran disaring dengan menggunakan kertas saring dan dicuci dengan akua DM sebanyak 2 kali. Endapan yang didapat dipindahkan ke dalam krus dan dioven selama 15 jam pada suhu $120^\circ C$. Setelah dioven endapan dihaluskan lalu dibagi menjadi 3 bagian, lalu dikalsinasi selama 4 jam pada suhu $400^\circ C$, $600^\circ C$, dan $800^\circ C$. Perlakuan yang sama dilakukan pada daun kopi robusta dengan variasi massa 12 g dan 20 g. Hasil yang diperoleh, dikarakterisasi dengan menggunakan XRD dan SEM

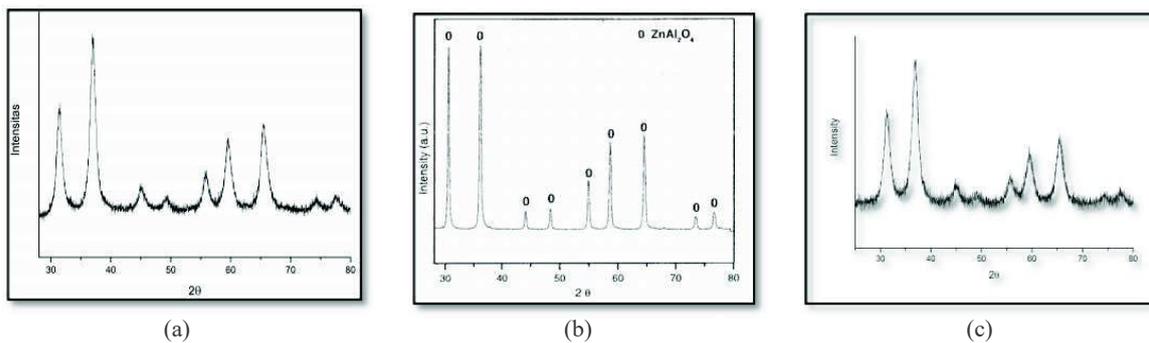
3. Hasil dan Pembahasan

Difraktogram $ZnAl_2O_4$ yang disintesis tanpa dan dengan menggunakan ekstrak ditunjukkan oleh Gambar 1. Gambar 1a menunjukkan difraktogram dari $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan dengan menggunakan ekstrak daun kopi 12 g pada suhu kalsinasi $800^\circ C$ sebagai hasil yang terbaik. Dari Gambar 1a dapat dilihat bahwa telah muncul puncak-puncak yang

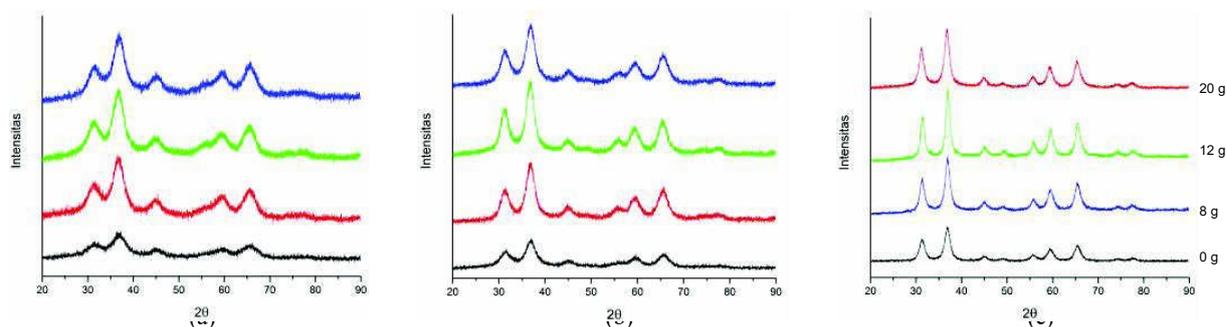
tajam pada $2\theta = 31,54^\circ$, $36,94^\circ$, $44,93^\circ$, $49,20^\circ$, $55,82^\circ$, $59,45^\circ$, $65,49^\circ$, $74,39^\circ$, dan $77,49^\circ$ dengan intensitas yang paling tinggi pada $2\theta = 36,94^\circ$ yaitu 1444. Puncak-puncak ini merupakan puncak yang khas untuk $ZnAl_2O_4$ dengan struktur spinel. Pola difraksi ini sesuai dengan pola difraksi standar yaitu JCPDS No.05.0669. Puncak-puncak ini mempunyai indeks miller pada (220), (311), (400), (331), (422), (511), (440), (620), dan (533). Selain itu, Difraktogram yang dihasilkan ini juga mempunyai pola yang sama dengan difraktogram $ZnAl_2O_4$ yang dilakukan oleh Ballarini (2009) (Gambar 1c) [4]. Puncak yang tajam pada difraktogram menunjukkan bahwa kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan sangat baik. Dari difraktogram juga dapat dilihat tidak terdapat puncak-puncak yang lain, sehingga $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan mempunyai kemurnian yang tinggi [1].

Jika dibandingkan dengan difraktogram tanpa ekstrak dapat dilihat bahwa difraktogram tanpa ekstrak menunjukkan puncak yang kurang jelas pada $2\theta = 49,02^\circ$, $74,31^\circ$, dan $77,34^\circ$ serta memiliki intensitas yang rendah dan celah yang lebar dibandingkan dengan difraktogram dengan ekstrak daun kopi (Gambar 1c). Hal ini menunjukkan bahwa kristalinitas $ZnAl_2O_4$ tanpa menggunakan ekstrak yang dihasilkan masih kurang baik. Pada difraktogram dengan ekstrak daun kopi puncak-puncak yang muncul sudah jelas dan tajam dengan intensitas tinggi dan celah yang sempit. Hasil ini menandakan bahwa ekstrak daun kopi dapat meningkatkan kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan. Peningkatan kristalinitas $ZnAl_2O_4$ dipengaruhi oleh kandungan senyawa kimia dalam ekstrak daun kopi seperti flavonoid, alkaloid, saponin, kafein, dan polifenol. Senyawa-senyawa ini mempunyai gugus OH aktif yang memungkinkan membatasi pembentukan partikel $ZnAl_2O_4$ dengan pembentukan senyawa kompleks sehingga menghasilkan $ZnAl_2O_4$ dalam bentuk kisi yang spesifik [5].

Difraktogram $ZnAl_2O_4$ dengan ekstrak daun kopi robusta yang dikalsinasi pada suhu $400^\circ C$, $600^\circ C$, dan $800^\circ C$ dengan variasi massa sampel dapat dilihat pada Gambar 2



Gambar 1. Difraktogram $ZnAl_2O_4$ (a) 12 g ekstrak daun kopi, (b) $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan oleh Ballarini (2009), dan (c) Tanpa Ekstrak



Gambar 2. Difraktogram $ZnAl_2O_4$ pada variasi suhu kalsinasi (a) 400°C, (b) 600°C, dan (c) 800°C dengan variasi massa ekstrak daun kopi 0 g, 8 g, 12 g, dan 20 g.

Dari Gambar 2a dapat dilihat bahwa difraktogram $ZnAl_2O_4$ yang dikalsinasi pada suhu 400°C mempunyai puncak yang lebar dengan intensitas yang rendah. Selain itu, puncak-puncak yang dihasilkan belum semua muncul. Hal ini menunjukkan bahwa sampel yang diperoleh masih berstruktur amorf. Namun, dari Gambar 2a dapat dilihat bahwa puncak difraksi $ZnAl_2O_4$ dengan ekstrak pada suhu kalsinasi 400°C lebih baik dibandingkan dengan puncak difraksi $ZnAl_2O_4$ tanpa ekstrak. Pada Gambar 2b difraktogram $ZnAl_2O_4$ yang dikalsinasi pada suhu 600°C dapat dilihat puncak-puncak yang muncul sudah mulai lebih tajam dan sudah muncul puncak lain pada $2\theta=55^\circ$, namun masih kurang jelas. Pada difraktogram suhu kalsinasi 800°C dapat dilihat telah muncul semua puncak yang tajam dengan intensitas yang tinggi, yang sesuai dengan standar JCPDS No.05.0669. Sehingga dapat disimpulkan bahwa kalsinasi terbaik pada penelitian ini yaitu pada suhu 800°C. Peningkatan suhu kalsinasi berperan pada pembentukan fasa spinel, sehingga kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan meningkat [6]. Pada Gambar 2c juga dapat dilihat bahwa variasi massa ekstrak daun kopi yang terbaik yaitu massa 12 g yang disintesis pada suhu kalsinasi 800°C. Hal ini

menunjukkan bahwa pada variasi massa 12 g kandungan pada ekstrak daun kopi paling efektif meningkatkan kristalinitas dari $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan. Peningkatan massa ekstrak mempengaruhi kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan [2]. Dari hasil perhitungan dengan menggunakan persamaan Debye Scherrer diperoleh ukuran kristal dari $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan (Tabel 1).

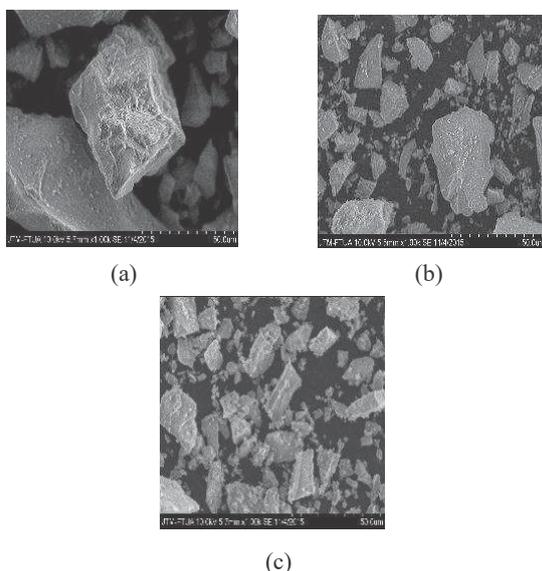
Tabel 1. Ukuran rata-rata kisi kristal (D) $ZnAl_2O_4$ dengan ekstrak daun kopi

No	Suhu kalsinasi (°C)	Ukuran rata-rata kristal (D) (nm)			
		0 g	8 g	12 g	20 g
1	400	17,37	11,52	10,7	19,74
2	600	14,37	19,86	17,37	11,89
3	800	11,87	23,23	29,23	29,23

Tabel 1 menunjukkan bahwa ukuran rata-rata kristal (D) yang dihasilkan berbeda-beda pada setiap variasi massa ekstrak yang digunakan. Ukuran kristal sangat bergantung pada lebar puncak difraksi. Semakin besar ukuran kisi kristal yang diperoleh maka puncak difraksi yang diperoleh akan semakin tajam sebaliknya jika ukuran kristal semakin

kecil maka puncak difraksi yang dihasilkan akan semakin lebar [7]. Hal ini dapat dilihat pada suhu kalsinasi 800°C dengan variasi 12 g ukuran kisi kristal yang dihasilkan semakin besar, dikarenakan puncak difraksi paling sempit dibandingkan dengan puncak pada variasi lainnya. Pada massa 20 g dengan suhu 600°C ukuran kisi kristal yang dihasilkan lebih kecil dibandingkan dengan suhu kalsinasi 400°C dan 800°C hal ini dikarenakan pada suhu 600°C kisi kristal $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan memiliki lebar puncak difraksi yang lebih lebar sehingga ukuran kisi kristalnya lebih kecil.

Mikrografi dengan menggunakan SEM dari $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan pada suhu 800°C dengan variasi massa ekstrak 0 g, 8 g, 12 g, dan 20 g ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Analisis SEM $ZnAl_2O_4$, a) Penambahan ekstrak daun kopi 8 g, b) Penambahan ekstrak daun kopi 12 g, dan c) penambahan ekstrak daun kopi 20 g.

Dari Gambar 3 dapat dilihat bahwa bentuk partikel yang dihasilkan tidak homogen dengan ukuran yang bervariasi. Mikrografi partikel $ZnAl_2O_4$ yang disintesis dengan ekstrak 8 g mempunyai bentuk yang lebih besar dan tidak terlihat agregat. Hal ini menunjukkan bahwa kandungan kimia yang terdapat pada ekstrak daun kopi dapat bertindak sebagai *capping agent* yang membatasi pertumbuhan $ZnAl_2O_4$ sehingga tidak mengalami agregat. Selain itu senyawa aktif yang mengandung gugus OH dapat mempengaruhi pertumbuhan partikel. Senyawa aktif akan teradsorpsi pada inti kristal dan membantu partikel untuk tumbuh secara terpisah [8]. Pada penggunaan ekstrak 12 g, tidak

terlihat agregat dan ukuran partikel lebih kecil dibandingkan ekstrak 8 g. Sedangkan pada penggunaan ekstrak 20 g, ukuran partikel lebih kecil lagi tetapi sudah mulai terbentuk agregat (gumpalan). Hal ini terjadi karena kandungan ekstrak terlalu banyak sehingga tidak efektif lagi dalam membatasi pertumbuhan partikel. Ini menunjukkan bahwa partikel yang terbaik dihasilkan pada penggunaan ekstrak daun kopi 12 g.

4. Kesimpulan

Dari penelitian yang dilakukan dapat disimpulkan bahwa penambahan ekstrak daun kopi robusta dapat meningkatkan kristalinitas $ZnAl_2O_4$ yang dihasilkan dengan tingkat kemurnian yang tinggi dan bentuk serta ukuran yang berbeda-beda. Kristalinitas yang terbaik pada penelitian ini dicapai pada penggunaan massa ekstrak daun kopi 12 g dengan suhu kalsinasi 800°C.

Ucapan Terima Kasih

Terima kasih kepada Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi Kemenristek Dikti yang telah mendanai kegiatan penelitian ini melalui Skim Hibah Bersaing.

Daftar Pustaka

- [1] Ragupathi C.J., Vijaya J., Narayanan S.L., Kennedy J.L., Ramakrishna S. 2013. Catalytic Properties Of Nanosized Zinc Aluminates Prepared by Green Process Using Opuntia Dillenii Haw Plant Extract. *Journal of Catalysis*, 34, 1951–1958
- [2] Angasa E., Sari I.N., Wardani P.K., Ghufira, Yudha S., Gustian I. 2015. Synthesis of Zinc Aluminate ($ZnAl_2O_4$) by Using Water Extract of Impatiens balsamina L. *Chemical and pharmaceutical research*, 7(10), 518-521
- [3] Wulandari, Agustini. 2014. *Aktivitas Antioksidan Kombucha Daun Kopi (Coffea Arabica) Dengan Variasi Lama Waktu Fermentasi dan Konsentrasi Ekstrak*. Skripsi. Universitas Muhammadiyah Surakarta. Surakarta
- [4] Ballarini, A.D., Sonia A.B., Alberto, A.C., Sergio, R.D., Osvaldo, A.S. 2009. Characterization of $ZnAl_2O_4$ Obtained by Different Methods and used as Catalytic Support Pt. *Catalyst Letter*, 129, 293-302
- [5] Maryanti E., Damayanti D., Gustian I., Yudha S.S. 2013. Synthesis of ZnO nanoparticles by hydrothermal method in aqueous rinds extracts of Sapindus rarak DC. *Materials Letters*, 118, 96-98
- [6] Hari Krishna Y., Kumar V.P., Chary K., Rao V.V. 2014.

Characterization and reactivity of Pd supported on $ZnAl_2O_4$ catalysts for direct coupling of ethylbenzene dehydrogenation with nitrobenzene hydrogenation. *Indian Journal of Chemistry*, 53A, 459-466

- [7] Abdullah, M., & Khairurrijal. 2009. Review : Karakterisasi Nanomaterial. *Jurnal Nanosains & Nanoteknologi*, 2(1), 1-9
- [8] Askarnejad, A., Alvin, M.A. & Morsali, A. 2011. Sonochemically Assisted Synthesis of ZnO Nanoparticles: A Novel Direct Method. Iran. *Journal of Chemical Engineering*, 30(3), 75-82