

PENGARUH VARIASI KONSENTRASI PREKURSOR TERHADAP KARAKTERISASI NANOPARTIKEL ZINC OXIDE DENGAN METODE SOL-GEL

Purnama Auliya Rahman¹, Salahuddin Junus², Intan Hardiatama²,
M Dimiyati Nashrullah², Haidzar Nurdiansyah²

¹Mahasiswa Jurusan Teknik Mesin Fakultas Teknik Universitas Jember

²Staf Pengajar Jurusan Teknik Mesin Fakultas Teknik Universitas Jember - Jl. Kalimantan 37 Jember 68121

Email: purnama.auliya@gmail.com

ABSTRACT

Nanomaterial research, especially in the field of experimentation, cannot be separated from characterization or measurement activities, with characterization we can be sure that the synthesized material meets the nanostructure criteria, one of which is nanometer-sized. In this study we will characterize ZnO nanomaterials from the sol-gel method. Sol-gel is a chemical method that changes the state of the sol (liquid) into a gel state which is then after treatment and the transition to solid oxide material. Zinc Oxide nanoparticles are made with variations in the precursor of Zinc Acetate Dihydrate 0.3 M and 0.1 M produce crystalline nanomaterial sizes of 157-123 nm. The crystal lattice parameters obtained are $a = 3.2714 \text{ \AA}$ and $c = 5.2121 \text{ \AA}$ and structural characterization revealed a single phase of ZnO with hexagonal wurtzite structure. For the average particle size of Zinc Oxide nanoparticle produced is 86,64-12,60 nm and the morphological form of ZnO nanoparticles produced is spherical and particles agglomerate. The final results show that the increase in the variation of the Zinc Acetate Dihydrate precursor will increase both the crystal size and the size of the particles produced.

Keyword: Nanoparticle, Zinc Oxide, Sol-gel method, SEM, XRD.

PENDAHULUAN

Teknik sol-gel adalah salah satu solusi pengolahan yang paling populer untuk produksi nanopartikel (kebanyakan oksida). Metode ini melibatkan serangkaian reaksi kimia yang mengubah larutan homogen secara ireversibel dari prekursor reaktan molekuler (sol) menjadi polimer tiga dimensi (gel) yang membentuk padatan elastis yang mengisi volume yang sama dengan solusinya. Sol adalah nama larutan koloid yang terbuat dari partikel padat berdiameter beberapa ratus nm, tersuspensi dalam fase cair. Gel dapat dianggap sebagai makromolekul padat yang direndam dalam pelarut. Jadi, secara umum, proses sol-gel terdiri dari transformasi kimia cairan (sol) menjadi keadaan gel dan selanjutnya setelah perlakuan dan transisi menjadi bahan oksida padat [1].

ZnO merupakan suatu semikonduktor dengan celah pita lebar pada grup semikonduktor II-IV. Doping natif dari semikonduktor dikarenakan kekosongan oksigen atau interstisi seng adalah tipe-*n* (Ozgur *et al.*, 2005). Seng oksida merupakan material yang dapat ditemukan di alam dengan bentuk *Zincite* dan merupakan semikonduktor yang memiliki celah pita 3,07 eV pada suhu kamar. Hal ini membuat nanomaterial ini cukup menjanjikan untuk aplikasi pada DSSC [2].

ZnO murni berbentuk serbuk putih, tapi di alam ia terdapat sebagai mineral langka *zincite*, yang biasanya mengandung *mangan* dan ketidakh murnian lainnya yang menimbulkan warna kuning hingga warna merah. Seng oksida mengkristal dalam dua bentuk, *heksagonal wurtzite* dan *kubik zincblende*. Struktur *wurtzite* merupakan yang paling stabil pada kondisi ambien. Bentuk *zincblende* dapat distabilkan dengan menumbuhkan ZnO pada substrat dengan struktur kisi kubik. Struktur kristal ini berbentuk *sphalerite* dengan adanya atom Zn ini pada setiap sudut dan bagian tengah sisi (*face centered cubic.FCC*) dan atom O sebagai intersiti di antara empat atom Zn yang berdekatan [3].

Pada penelitian ini digunakan mikroskop elektron. *Scanning Electron Microscopy* adalah salah satu jenis mikroskop elektron yang menggunakan berkas elektron untuk menggambar profil permukaan benda. Prinsip kerja SEM adalah menembakkan permukaan benda dengan berkas elektron berenergi tinggi. Permukaan benda yang dikenai berkas akan memantulkan kembali berkas tersebut atau menghasilkan elektron sekunder ke segala arah. Tetapi ada satu arah di mana berkas dipantulkan dengan intensitas tertinggi. Detektor di dalam SEM mendeteksi elektron yang dipantulkan dan menentukan lokasi berkas yang dipantulkan dengan intensitas tertinggi. Arah

tersebut memberi informasi profil permukaan benda seperti seberapa landai dan ke mana arah kemiringan [4].

Pada penelitian ini difraksi sinar-X digunakan untuk mengidentifikasi struktur kristal suatu padatan dengan membandingkan nilai jarak d (bidang kristal) dan intensitas puncak difraksi dengan data standar. Berdasarkan metode ini, makin kecil ukuran kristalinitas maka makin lebar puncak difraksi yang dihasilkan. Kristal yang berukuran besar dengan suatu orientasi menghasilkan puncak difraksi yang mendekati sebuah garis vertikal. Kristalinitas yang sangat kecil menghasilkan puncak difraksi yang sangat lebar dan memberikan informasi tentang ukuran kristalinitas. Penyebab kristalinitas yang kecil menghasilkan puncak yang lebar adalah dikarenakan kristalinitas yang kecil memiliki bidang pantul sinar-X yang terbatas. Puncak difraksi dihasilkan oleh interferensi secara konstruktif cahaya yang dipantulkan oleh bidang-bidang kristal. Hubungan antara kristalinitas dengan lebar puncak difraksi dapat diprosimasi dengan persamaan *Scherrer*,

$$D \approx \frac{\lambda}{B \cos \theta_B}$$

dimana D adalah ukuran (diameter) kristallites, λ adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan, θ_B adalah sudut Bragg, B adalah FWHM (full width at half maximum) satu puncak yang dipilih [5].

Dalam aplikasi DSSC saat ini ZnO telah dipertimbangkan sebagai alternatif pengganti TiO₂ karena beberapa pertimbangan. Salah satunya alasan strategis adalah bahwa ZnO memiliki energi pita celah yang hampir sama dengan TiO₂ yaitu sebesar 3.07 eV. Selain itu ZnO dapat difabrikasi dengan berbagai macam sintesis sederhana untuk memperoleh bentuk morfologi struktur nano yang bervariasi dan ukuran yang berbeda-beda. Salah satu alasan lainnya adalah sifat optik pada ZnO yaitu sifat cahaya pendar (*luminescence*), dimana nanostruktur ZnO dengan diameter yang lebih kecil akan mempunyai sifat absorpsi cahaya yang lebih baik [6].

METODE PENELITIAN

a. Waktu dan Tempat Penelitian

Penelitian dilakukan pada bulan November 2018 sampai dengan Februari 2019.

Tempat penelitian pada penelitian ini dilakukan di Laboratorium Material Maju, CDAST (*Center for Development of Advance Science and Technology*), Universitas Jember.

b. Alat

Alat yang digunakan pada penelitian ini yaitu:

1. Hot plate and magnetic stirrer

2. Centrifuge
3. Gelas ukur
4. Cawan 50 ml
5. Pipet
6. Termometer
7. Timbangan digital
8. Furnace
9. pH meter
10. SEM
11. XRD

c. Bahan

Bahan yang digunakan pada penelitian ini sebagai berikut:

1. Zinc Acetate Dihydrate
2. NaOH
3. Aquadest

d. Prosedur Percobaan

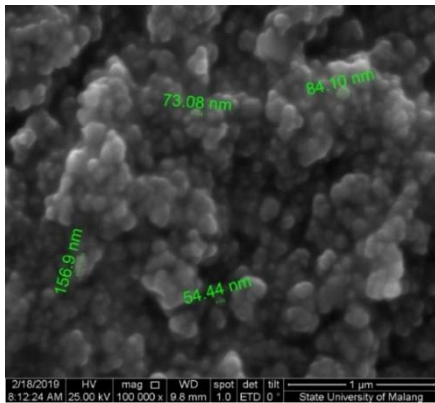
Variasi yang digunakan adalah 0,3 M dan 0,1 M untuk prekursor *Zinc Acetate Dihydrate*. Dengan menggunakan pelarut Aquadest dan katalis NaOH. Masing-masing variasi dicampur dengan 100 mL dengan diaduk serta dipanasi dengan suhu kurang lebih 70°C selama 10-20 menit. Lalu setelah semua tercampur dilakukan proses Aging selama 24 jam. Setelah itu dikalsinasi dengan suhu 700°C selama 2 jam dengan furnace.

HASIL DAN PEMBAHASAN

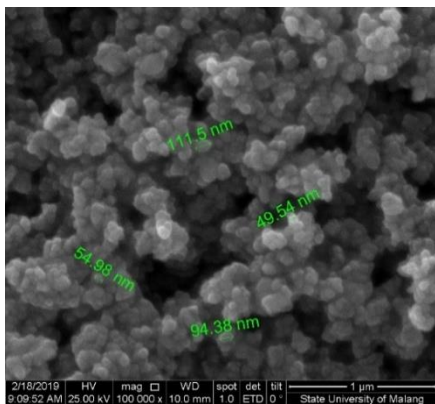
1. SEM (*Scanning Electron Microscopy*)

Pengujian SEM ini bertujuan untuk mengetahui ukuran dan morfologi nanopartikel ZnO hasil metode sol-gel. Analisis data distribusi nanopartikel ZnO ini menggunakan program ImageJ, nanomaterial adalah sebuah obyek yang memiliki setidaknya satu dimensi dalam skala nanometer (sekitar 1 sampai 100 nm).

Pengurangan variasi *Zinc Acetate Dihydrate* 0,3 M menjadi 0,1 M terjadi peningkatan tingkat pH dari pH 9 menjadi pH 10 dan menunjukkan pengurangan rata-rata distribusi ukuran partikel dari 157 nm menjadi 123 nm, seperti yang terlihat pada Gambar 1. Pengurangan ukuran ini dipengaruhi oleh rasio konsentrasi pelarut yang dipakai sehingga akan mempengaruhi tingkat pH. larutan campuran (Zn(NO₃)₂·4H₂O dan NH₄OH tidak bereaksi menghasilkan nanorod ZnO, ditandai larutan tetap bening dan tidak ditemukan endapan hingga proses pemanasan.



(a)



(b)

Gambar 1. Hasil SEM variasi prekursor Zinc Acetate Dyhidrate (a) 0,3 M dan (b) 0,1 M.

2. XRD (X-Ray Diffraction)

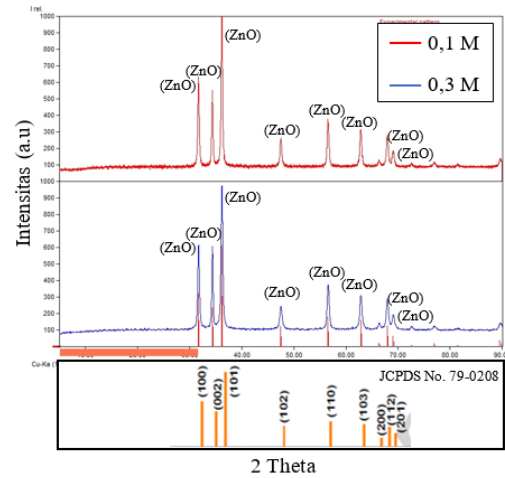
a). Perbandingan ukuran kristal

Difraksi pola XRD dinyatakan dengan *peak* (puncak), yang mana puncak tersebut bisa memprediksi ukuran kristalin, parameter kisi serta susunan atom yang dihasilkan. Analisa puncak untuk menentukan ukuran kristalin ini menggunakan metode *Scherrer*, makin kecil ukuran kristalin maka puncak difraksi yang dihasilkan semakin lebar. Kristal yang berukuran besar dengan satu orientasi menghasilkan puncak difraksi yang mendekati garis vertikal [7].

Posisi puncak-puncak yang terjadi pada uji XRD tergantung dari struktur kristalin, hal ini yang dapat digunakan untuk menentukan struktur dan ukuran kristalin dari material yang di uji.

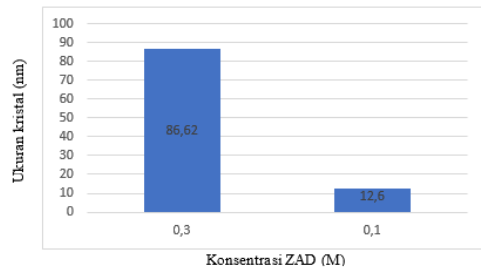
Pengurangan variasi prekursor *Zinc Acetate Dyhidrate* dari 0,3 M menjadi 0,1 M ini menunjukkan pengurangan ukuran kristalin yang terbentuk dari 86,62 nm menjadi 12,60 nm, seperti yang terlihat pada Gambar 4. Pengurangan ukuran kristal ini seiring dengan penurunan konsentrasi larutan prekursor yang akan mempengaruhi tingkat pH. Tingkat pH mempengaruhi disolusi ZnO yang terjadi dengan kuat karena adanya

konsentrasi tinggi dari ion OH⁻. Dan juga larutan prekursor yang asam akan secara langsung mempengaruhi laju pertumbuhan kristal ZnO sesuai dengan kekuatan larutan serta menginduksi reaksi kimia pada permukaan kutub ZnO.



Gambar 3. Hasil XRD variasi prekursor Zinc Acetate Dyhidrate 0,3 M dan 0,1 M.

Dari Gambar 3 diatas, dapat terlihat bahwa puncak yang dihasilkan adalah pada derajat difraksi (2θ) = 31.73, 34.51, 36.31, 47.64, 56.68, 62.83, 66.48, 68.08 dengan *Indeks Miller's* (hkl) tiga puncak paling intens adalah (100), (002) dan (101). Data diatas juga cocok dengan data standar JCPDS No. 79-0208.



Gambar 4. Perbandingan ukuran kristal variasi prekursor Zinc Acetate Dyhidrate 0,3 M dan 0,1 M.

b). Parameter kisi kristalin ZnO

Berdasarkan pola difraksi yang terbentuk, dapat diperoleh *Indeks Miller* (h,k,l) dengan mencocokkan data hasil karakterisasi XRD dengan data COD (*Crystallography Open Database*). Parameter kisi diperoleh dengan menggunakan metode *Cohen*. Berdasarkan metode tersebut, parameter kisi a dan c dari ZnO dihitung dari analisis pola difraksi sinar-X dan diperkirakan dari persamaan sistem *heksagonal*,

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3} \left(\frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right) + \frac{l^2}{c^2}$$

dimana

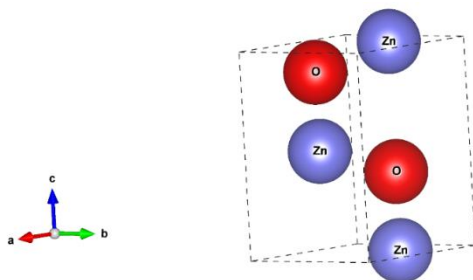
d adalah jarak antar bidang dan $h k l$ adalah Indeks Miller.

Menurut Purnomo (2013), ketajaman dan intensitas puncak pada spektrum menunjukkan kualitas kristal berupa puncak tajam (*sharp*) dan memiliki derajat keteraturan yang tinggi. Sedangkan pada *amorf*, puncak-puncak yang dihasilkan sangat landai karena memiliki derajat keteraturan yang rendah.

Dari hasil perhitungan didapatkan nilai parameter kisi kristalin nanopartikel ZnO dari rumus diatas adalah $a=3.2714 \text{ \AA}$ dan $c=5.2121 \text{ \AA}$.

c). Struktur kristal ZnO

Setelah mengetahui parameter struktur kristal ZnO yang diperoleh, maka selanjutnya adalah menggambarkan struktur/formasi atom Zn dan O melalui program VESTA v.3.4.5. Nilai masukan (*input*) yang diperoleh dari COD (*Crystallography Open Database*) dimasukkan dalam program tersebut. Penggambaran kristalin ZnO dari Gambar 7 dibawah, bisa terlihat bahwa bola berwarna biru adalah atom Zn (*Zinc*) dan bola berwarna merah adalah atom O (*Oxygen*), serta bisa diketahui bahwa struktur kristal ZnO yang terbentuk adalah *hexagonal*. Data input struktur atom ZnO yang diolah didapatkan dari data COD (*Crystallography Open Database*) yang tersedia di software analisis XRD.



Gambar 7. Struktur *hexagonal* atom nanopartikel ZnO.

Perhitungan untuk membuat ilustrasi struktur atom kristal nanopartikel ZnO yang berbentuk *hexagonal* adalah dengan fungsi pertukaran optimalisasi *local-density approximation* (LDA) atau yang biasa disebut dengan perkiraan kepadatan lokal yang dikoreksi dengan metode *Hubbard U*. Dengan menggunakan konversi optimasi secara geometri yang diberi gaya maksimum $0,01 \text{ eV/\AA}$ dan perpindahan atom maksimum $0,0005 \text{ \AA}$. Dan hasil yang diperoleh adalah struktur kristal ZnO *hexagonal* ZnO (P63mc).

KESIMPULAN

1. Hasil pengujian SEM menunjukkan bahwa rata-rata pertambahan ukuran partikel nanopartikel ZnO yang dihasilkan dengan menggunakan variasi prekursor *Zinc Acetate Dihydrate* 0,3 M menjadi 0,1 M adalah 157 nm menjadi 123 nm dan partikel berbentuk bulat serta beraglomerasi.

2. Hasil pengujian XRD menunjukkan bahwa ukuran kristalin yang dihasilkan adalah dengan variasi prekursor *Zinc Acetate Dihydrate* 0,3 M menjadi 0,1 M adalah 86,64 nm menjadi 12,60 nm.

3. Parameter kisi kristalin nanopartikel ZnO yang dihasilkan adalah $a=3.2714 \text{ \AA}$ dan $c=5.2121 \text{ \AA}$. Struktur dan formasi atom kristalin nanopartikel ZnO yang terbentuk adalah *hexagonal*.

Saran

1. Perlu dilakukan penelitian tentang variasi suhu kalsinasi, tinggi rendah pH, waktu aging dan *holding time* kalsinasi.

2. Perlu dilakukan penelitian tentang penggunaan katalis yang berbeda.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] V. Pokropivny, R. Lohmus, I. Hussainova, A. Pokropivny, S.Vlassov. Introduction in nanomaterials and nanotechnology. – University of Tartu. –2007, 225p
- [2] Cinde Puspita Wulandari, 2016, *Sintesis Dan Karakterisasi Lapis Tipis ZnO Dengan Rasio Variasi Konsentrasi Prekursor Dan Konsentrasi Basa*, Jember, Jurusan Kimia FMIPA Unej
- [3] A.J. Hashim*, M.S. Jaafar, Alaa J. Ghazai, N.M. Ahmed. 2011. *Fabrication and characterization of ZnO thin film using sol-gel method*. Optik
- [4] Mikrajuddin Abdullah & Kikuo Okuyama, PROC. ITB Eng. Science Vol. 36 B, No. 2, 2004, 141-153, *Zinc Oxide Nanoparticles Prepared By a Simple Heating: Effect of Polymer Addition and Polymer Absence on the Morphology*, Department of Physics, Bandung Institute of Technology Jl. Ganeca 10 Bandung 40132, Indonesia
- [5] Khairurrijal, 2008, *Review: Sintesis Nanomaterial*, Jurnal Nanosains & Nanoteknologi ISSN 1979-0880 Vol. 1 No.2, Juli 2008
- [6] Ghiska Ramahdita, 2011, *Karakterisasi Nanopartikel ZnO Hasil Sintesis Dengan Metode Presipitasi Dan Perlakuan Pra-Hidrothermal*, Fakultas Teknik Universitas Indonesia
- [7] Abdullah, M., Virgus Y., Nirmin dan Khairurrijal. 2008. *Sintesis Nanomaterial. Jurnal Nanosains dan Nanoteknologi*. Vol. 1. No.1