

Research Article

Struktur dan Morfologi Nanopartikel ZnO yang Disintesis dengan Metode Sonokimia

Structure and Morphology of ZnO Nanoparticles Prepared by Sonochemical Method

Akhiruddin Maddu*, Zetria Zikri, Irzaman Irzaman

Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Pertanian Bogor, Bogor 16680 Indonesia

*Corresponding Author: akhiruddin@apps.ipb.ac.id

ARTICLE INFO	ABSTRACT
<p><i>Article history:</i> Submitted: 2 May 2023 Revised : 4 June 2023 Accepted : 4 July 2023 Published : 7 July 2023</p>	<p>Ultrasonic wave has been utilized to synthesize the ZnO nanoparticle. ZnO is formed from a mixture of zinc acetate (ZnAc) and Natrium Hydroxide (NaOH) with various concentrations of ZnAc 0.5 M (ZnO 1:1) and 1.5 M (ZnO 3:1) and the concentration of NaOH remained at a concentration of 0.5 M. The Structure and crystal size were characterized using X-ray Diffraction (XRD), while its morphology was examined by Scanning Electron Microscopy (SEM). The results show that ZnO 1:1 has a higher (stronger) diffraction intensity than the ZnO 3:1. The crystallite size of ZnO 1:1 averaged 30.57 ± 4.31 nm while the ZnO 3:1 had an average crystallite size of 20.25 ± 7.12 nm. From the size of the crystallites ZnO particles that are formed include nanoparticles. ZnO 1:1 SEM image shows the shape of microrods in the 1:1 ZnO sample while in the 3:1 ZnO sample no microrods are formed. Based on the morphology, the 1:1 ZnO sample has an average size of 230 nm and is larger than the 3:1 ZnO sample which has an average size of 50 nm.</p>
<p>Keywords: SEM Ultrasonic XRD ZnO</p>	
<p>ABSTRAK</p>	
<p><i>Keywords:</i> SEM Ultrasonic XRD ZnO</p>	<p>Gelombang ultrasonik telah digunakan untuk membantu sintesis nanopartikel ZnO. ZnO terbentuk dari campuran zinc acetate (ZnAc) dan NaOH. ZnO disintesis dengan variasi konsentrasi ZnAc 0,5 M (ZnO 1:1) dan 1,5 M (ZnO 3:1) dan konsentrasi NaOH tetap pada konsentrasi 0,5 M. Sampel-sampel dikarakterisasi struktur dan ukuran kristalnya dengan XRD dan morfologinya dengan SEM. Hasil Karakterisasi XRD di mana sampel ZnO 1:1 memperlihatkan intensitas difraksi lebih tinggi (kuat) dibandingkan sampel ZnO 3:1. Ukuran kristalit sampel ZnO 1:1 rata-rata $30,57 \pm 4,31$ nm sedangkan sampel ZnO 3:1 memiliki ukuran kristalit rata-rata $20,25 \pm 7,12$ nm. Dari ukuran kristalit tersebut partikel ZnO yang terbentuk termasuk nanopartikel. ZnO 1:1 Citra SEM memperlihatkan bentuk batang mikro (microrods) pada sampel ZnO 1:1 sedangkan pada sampel ZnO 3:1 tidak terbentuk batang mikro. Berdasarkan morfologinya, sampel ZnO 1:1 memiliki ukuran rata-rata 230 nm dan lebih besar dibandingkan dengan sampel ZnO 3:1 yang memiliki ukuran rata-rata 50 nm.</p>

Pendahuluan

ZnO telah banyak digunakan dalam berbagai bidang diantaranya sebagai bahan baku *suncream* yang efektif dalam menyerap sinar UV dan diaplikasikan dalam bidang elektronik seperti dalam UV laser, perangkat *light-emitting-diodes* (LED) hingga elektroda *photovoltaic*.¹ Riset juga menunjukkan bahwa ZnO memiliki kemampuan anti mikroba yang dapat digunakan sebagai bahan kemasan pangan.² Seng oksida merupakan material anorganik dengan rumus kimia ZnO. Seng oksida adalah senyawa semikonduktor yang berada pada golongan II-VI dimana

mempunyai sifat elektronik dan fotonik, sifat tersebut penting karena memiliki stabilitas termal yang baik, energi ikat eksiton yang besar (60 meV).^{2,3} Seng oksida mengkristal pada heksagonal *wurtzite*, kubik, dan *zinc blende*.

Material ZnO merupakan semikonduktor dengan celah pita energi yang lebar (3,4 eV) yang mempengaruhi sifat optik dan sifat listriknya, seperti sifat pendaran (luminesensi).⁴ ZnO sering diaplikasikan sebagai sensor cahaya ultraviolet (UV) karena ZnO mengalami peningkatan konduktivitas permukaan bila menyerap cahaya ultraviolet (UV) pada substrat kaca berlapis bahan oksida konduktif transparan (TCO)⁵, juga sebagai elektroda transparan dalam teknologi fotovoltaik karena memiliki transmittivity tinggi (cahaya tampak) dan material sel surya. Material nano ZnO dapat disintesis dengan beberapa metode, diantaranya aqueous chemical growth (ACG), vapor liquid solid (VLS), electrochemical deposition (ECD), chemical vapor deposition (CVD), metal organic chemical vapor deposition (MOCVD), physical vapor depositon (PVD), dan chemical vapor transport dan condenstation (CVTC).^{4,6}

Metode sol-gel, presipitasi, dan mikro emulsi telah berhasil mensintesis nanomaterial ZnO dengan variasi bentuk dan ukuran partikel.⁷ Penggunaan metode tersebut memiliki kekurangan diantaranya waktu produksi yang lama, memerlukan energi yang besar serta penggunaan bahan kimia yang dapat merusak lingkungan. Metode sonokimia dapat menjadi metode alternatif untuk mensintesis oksida logam dengan bantuan iradiasi ultrasonik yang dapat mempersingkat waktu reaksi dalam preparasi beberapa senyawa oksida fungsional yang di sintesis melalui mekanisme ini.^{8,9} Metode ini juga dapat mengendalikan bentuk ataupun ukuran partikel yang dihasilkan. Pada penelitian dengan menggunakan metode ini diharapkan dapat menghasilkan sintesis material yang lebih cepat dan ekonomis.

Metodologi

Alat dan Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain adalah akuades, *sodium hydroxide* (NaOH) 97% (Merck) dan *zinc acetate dihydrate* [$\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$] 99.5% (Merck). Alat-alat yang digunakan yaitu, perangkat reaktor hidrotermal, *hotplate magnetic stirrer*, *centrifuge*, *ultrasonic cleaner*, neraca analitik, SHIMADZU 7000 X-Ray Diffractometer mAXima dan SEM.

Sintesis nanopartikel ZnO

Sebanyak 1.097 g (0.05 M) seng asetat dihidrat, $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan di dalam 100 mL akuades, di campurkan dengan sebanyak 0.2 g NaOH (0.05 M) yang dilarutkan di dalam 100 mL akuades, hasil campuran kemudian ditransfer ke dalam *ultrasonic cleaner*. *Ultrasonic cleaner* berfungsi untuk memperkecil ukuran ZnO yang terbentuk, *ultrasonic cleaner* dioperasikan selama 2 jam. Kemudian zat terlarut dan pelarut dipisahkan menggunakan centrifuge. Zat terlarut kemudian dipanaskan di dalam furnace sehingga terbentuk serbuk ZnO perbandingan konsentrasi 1:1. Prosedur diatas di ulang untuk pembentukan ZnO perbandingan konsentrasi 3:1. Serbuk ZnO yang di dapatkan kemudian di karakterisasi menggunakan karakterisasi XRD dan SEM.

Analisis Data

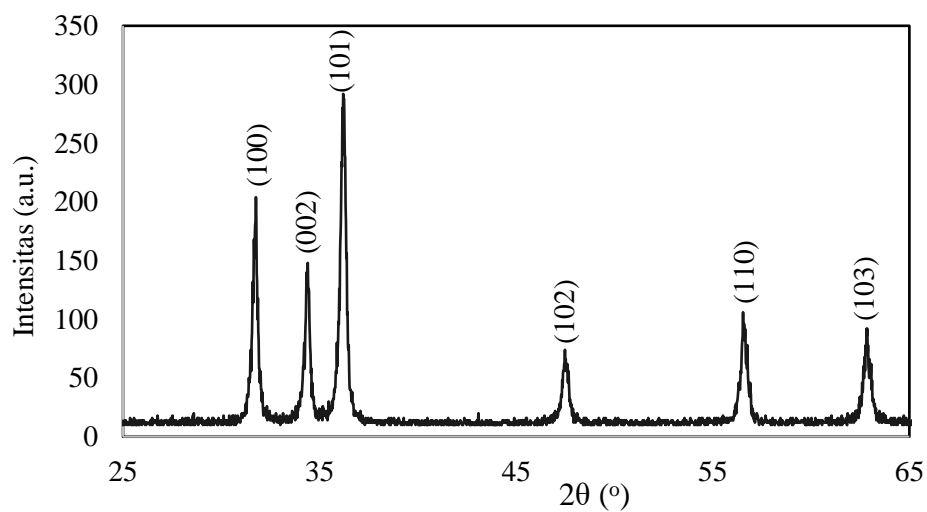
Seng oksida (ZnO) yang telah disintesis kemudian di karakterisasi XRD untuk mengetahui struktur kristal dan ukuran kristalnya. Pola difraksi sinar-X direkam dalam rentang sudut 2 θ dari 20 hingga 70°. Difraktometer sinar-X menggunakan sumber radiasi Cu K_α ($\lambda = 1.54 \text{ \AA}$) pada 40 kV dan 30 mA. Seng oksida (ZnO) yang telah disintesis kemudian dikarakterisasi SEM untuk

mengetahui morfologi permukaan nanopartikel ZnO. Sampel-sampel disiapkan dengan melakukan *casting* emas pada sampel ZnO agar permukaannya menjadi bersifat konduktif sehingga dapat mempermudah diperoleh citra SEM yang ingin dihasilkan.

Hasil dan Pembahasan

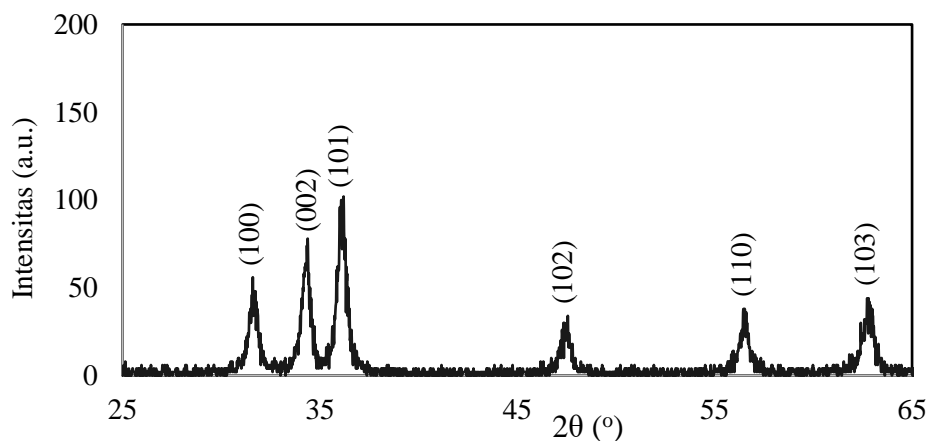
Analisis XRD

Karakterisasi XRD bertujuan mengetahui fasa pada sampel. Pola difraksi sinar-X diperoleh dari berkas sinar-X oleh bidang hkl suatu kristal. Perbedaan orientasi bidang kristal menyebabkan timbulnya pola berupa puncak-puncak berbeda pada sudut difraksi tertentu. Hukum Bragg dapat memperkirakan difraksi yang terjadi pada suatu kristal atomik. Spektra difraksi sinar-X sampel diperoleh dengan radiasi $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$) pada 2θ antara 20° sampai 70° . Pola XRD dicocokkan dengan *joint committee on powder diffraction standards* (JCPDS).



Gambar 1. Pola XRD hasil sintesis ZnO 1:1.

Gambar 1 menunjukkan pola XRD pada sampel ZnO 1:1. Dalam pola difraksi tersebut dapat dilihat *peak-peak* difraksi pada sudut 2θ hasil uji XRD yang telah dilakukan yaitu terbentuk pada sudut 31.731° , 34.388° , 36.213° , 47.542° , 56.574° , dan 62.821° dengan bidang hkl berturut-turut (1 0 0), (0 0 2), (1 0 1), (1 0 2), (1 1 0), dan (1 0 3).^{2,6,10,11}



Gambar 2. Pola XRD hasil sintesis ZnO 3:1.

Gambar 2 menunjukkan pola XRD pada sampel ZnO 3:1. Dalam pola difraksi tersebut dapat dilihat puncak-puncak difraksi pada sudut 2θ hasil uji XRD yang telah dilakukan yaitu terbentuk pada sudut 31.647° , 34.308° , 36.2136° , 47.440° , 56.476° , dan 62.744° dengan bidang hkl berturut-turut (1 0 0), (0 0 2), (1 0 1), (1 0 2), (1 1 0), dan (1 0 3).^{9,12-14} **Tabel 1** menunjukkan sudut difraksi dan indeks miller sampel ZnO perbandingan 1:1 dan 3:1.

Secara umum posisi puncak-puncak XRD yang terdeteksi pada sampel ZnO pada konsentrasi 0.5 M (1:1) memiliki sudut difraksi sedikit lebih besar dari konsentrasi 1.5 M (3:1). Orientasi pertumbuhan yang paling tinggi ditunjukkan pada sudut difraksi 36° pada kedua sampel. Intensitas sinar yang dipantulkan pada sampel ZnO konsentrasi 0.5 M lebih besar dari pada konsentrasi 1.5 M. Hal ini membuktikan bahwa sintesis ZnO dengan konsentrasi 0.5 M (1:1) mempunyai kemurnian yang lebih tinggi dibandingkan konsentrasi 1.5 M (1:3).

Gambar 1 dan **Gambar 2** mengkonfirmasi bahwa secara umum kedua sampel menunjukkan orientasi pertumbuhan ZnO yang sama dengan puncak tertinggi terdapat pada sudut difraksi 2θ sekitar 36° bidang hkl 1 0 1 dan diikuti dengan puncak 2θ sekitar 31° dan 34° . Struktur ZnO seperti ini dilaporkan memiliki karakteristik optik yang baik.¹⁵

Perhitungan parameter kisi dari sampel ZnO menggunakan persamaan Cramer dan Cohen. Kemudian, hasil yang diperoleh dibandingkan dengan database *joint committee on powder diffraction standard* (JCPDS). Berdasarkan hasil yang telah dihitung menggunakan persamaan Cramer dan Cohen, diperoleh nilai parameter kisi dari sampel ZnO yang dirangkum oleh **Tabel 2**. Berdasarkan database JCPDS, ZnO memiliki sistem kristal heksagonal dengan nilai parameter kisi $a = b = 3.249 \text{ \AA}$ dan $c = 5.205 \text{ \AA}$. Berdasarkan hasil tersebut, dapat dilihat bahwa parameter kisi yang diperoleh pada sampel ZnO mendekati nilai parameter kisi sebagaimana yang tercantum pada database JCPDS. Persentase nilai ketepatan parameter kisi partikel ZnO (1:1) sebesar 99.76 % untuk parameter kisi a dan 99.80 % untuk parameter kisi c. Persentase nilai tersebut lebih tinggi jika dibandingkan dengan sampel ZnO (3:1) yang memiliki presentase ketepatan parameter kisi a sebesar 99.45% dan 99.46% untuk parameter kisi c.

Tabel 1. Pelabelan sampel untuk setiap sel koin berdasarkan ketebalannya.

Sudut difraksi ZnO (1:1)	Sudut difraksi ZnO (3:1)	Indeks Miller (h k l)
31,7641	31,6472	(1 0 0)
34,4060	34,3080	(0 0 2)
36,2424	36,1358	(1 0 1)
47,5420	47,4400	(1 0 2)
56,5872	56,4766	(1 1 0)
62,8210	62,7447	(1 0 3)

Tabel 2. Pelabelan sampel untuk setiap sel koin berdasarkan ketebalannya.

Sampel	Parameter kisi (\AA)		Ketepatan (%)	
	a=b	c	a=b	c
ZnO (1:1)	3.2412	5.1946	99.76	99.80
ZnO (3:1)	3.2310	5.1770	99.45	99.46

Tabel 3. Pelabelan sampel untuk setiap baterai sel koin berdasarkan ketebalannya.

Sampel	Rata-rata ukuran kristalit (nm)
ZnO (1:1)	30.57 ± 4.31
ZnO (3:1)	20.25 ± 7.12

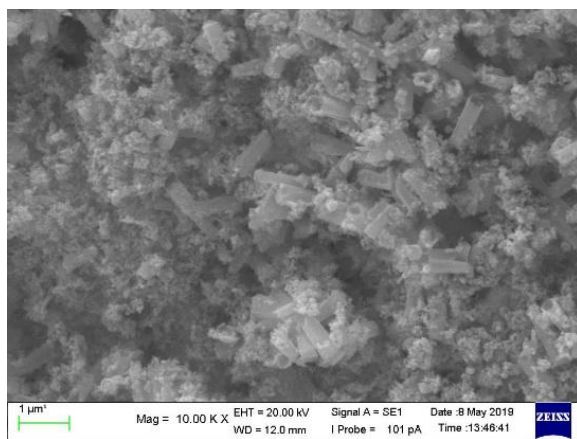
Ukuran kristalit sampel ZnO dihitung berdasarkan data pelebaran pola difraksi sinar-X dengan menggunakan persamaan Scherrer yang diberikan oleh persamaan (1)¹⁶

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \tag{1}$$

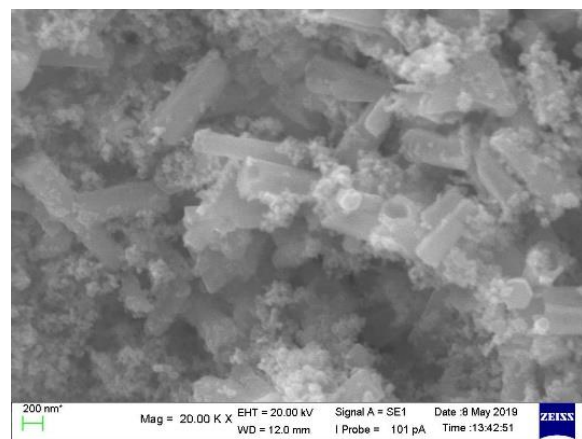
dimana D adalah ukuran kristalit, K adalah konstanta Scherrer sebesar 0,90, λ adalah 55recurs gelombang sinar-X (untuk sumber CuK α sebesar 1,5418 Å), β adalah lebar penuh setengah maksimal (FWHM) puncak pola XRD dan θ adalah sudut difraksi. Hasil perhitungan diperoleh ukuran kristalit rata-rata sampel ZnO dirangkum pada **Tabel 3**. Ukuran kristalit rata-rata sampel ZnO (1:1) sebesar (30.57 ± 4.31) nm lebih besar dibandingkan dengan sampel ZnO (3:1) sebesar (20.25 ± 7.12) nm. Dengan demikian, komposisi konsentrasi 55recursor (Zinc acetate) dan alkalin (NaOH) sangat berpengaruh terhadap ukuran kirstalit nanopartikel ZnO.

Morfologi

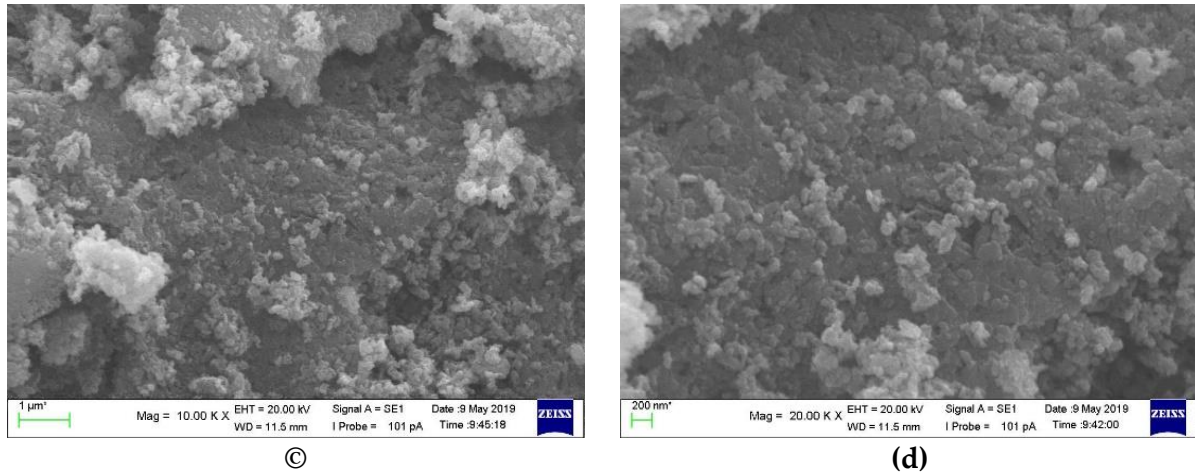
SEM digunakan untuk mengamati morfologi dan ukuran permukaan dari sampel yang akan diuji. Sumber elektron ditembakkan pada sampel dan sampel menghamburkan elektron berdasarkan struktur elektroniknya. Jika sampel bersifat isolatif, maka perlu dilakukan pelapisan dengan logam emas. Citra yang terbentuk menunjukkan struktur dari sampel yang diuji. Spesimen sasaran sangat tipis agar berkas yang dihantarkan tidak diperlambat atau dihamburkan terlalu banyak. Karakterisasi SEM menggunakan perbesaran 10.000x dan 20.000x. Hasil SEM dapat dilihat pada **Gambar 3**.



(a)



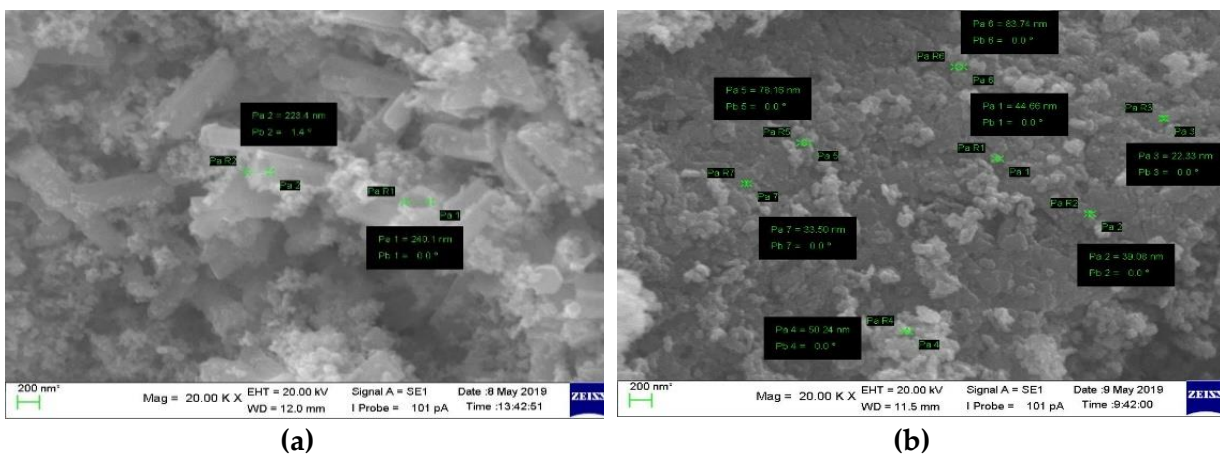
(b)



Gambar 3. Citra SEM sampel ZnO dengan perbesaran 10.000× dan 20.000× pada (a) ZnO 1:1 (perbesaran 10.000×), (b) ZnO 1:1 (perbesaran 20.000×), (c) ZnO 3:1 (perbesaran 10.000×), (d) ZnO 3:1 (perbesaran 20.000×).

Hasil penelitian menunjukkan pada perbesaran 10.000x dan 20.000x 1:1 terbentuk microrods, sedangkan perbesaran 10.000x dan 20.000x 3:1 tidak terbentuk microrods. Hal tersebut disebabkan oleh perbandingan ZnAc dan NaOH yang terlalu besar sehingga pembentukan ZnO tidak terjadi sempurna, sedangkan pada perbandingan ZnAc dan NaOH yang sama pembentukan ZnO lebih baik. Ukuran morfologi dapat dilihat pada Gambar 3.

Gambar 4 menunjukkan pengukuran morfologi ZnO pada beberapa titik. Ukuran ZnO perbandingan 1:1 cukup besar dengan ukuran berkisar antara 220 nm sampai 240 nm yang menandakan bahwa material tersebut belum bisa disebut dengan nanomaterial. Ukuran ZnO perbandingan 3:1 mempunyai ukuran cukup kecil yang berkisar 20 nm sampai 80 nm sehingga material tersebut dapat dikatakan dengan nanomaterial.



Gambar 4. Ukuran morfologi ZnO pada perbesaran 20.000× pada (a) ZnO 1:1 (b) ZnO (3:1)

Kesimpulan

ZnO dapat disintesis melalui metode sonokimia dengan bantuan gelombang ultrasonik. ZnO yang dihasilkan pada konsentrasi 0.5 M Zinc Acetate dicampur dengan 0.5 M NaOH (1:1) mempunyai hasil yang lebih baik dibandingkan ZnO yang dihasilkan pada konsentrasi 1.5 M Zinc Acetate dicampur dengan 0.5 M NaOH (3:1). Berdasarkan analisa pola XRD, pada perbandingan 1:1 ZnO yang dihasilkan mempunyai intensitas difraksi yang lebih tinggi dan puncak yang lebih tajam dibandingkan perbandingan 3:1. Hal ini menandakan tingkat kristalinitas ZnO 1:1 lebih bagus dibandingkan ZnO 3:1. Ukuran rata-rata kristalit sampel ZnO (1:1) sebesar (30.57 ± 4.31) nm lebih besar dibandingkan dengan ukuran rata-rata kristalit sampel ZnO (3:1) sebesar (20.25 ± 7.12) nm. Berdasarkan analisa pola SEM pada ZnO 1:1 terbentuk microrods yang menandakan ZnO yang terbentuk mempunyai karakteristik optik yang baik.

Pendanaan

Penelitian ini tidak menerima pendanaan.

Ucapan Terima Kasih

Ucapan terima kasih kami haturkan kepada Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, IPB University yang telah memfasilitasi kegiatan penelitian ini.

Konflik Kepentingan

Penulis menyatakan tidak ada konflik kepentingan.

Kontribusi Penulis

Akhiruddin Maddu: Validasi, Analisis formal, Investigasi, Kurasi data, Menulis – meninjau & mengedit. **Zetri Zikri:** Validasi, Analisis formal, Investigasi, Kurasi data. **Irzaman:** Methodology, Analisis formal, Investigasi, Supervisi.

Daftar Pustaka

1. da Silva DJ, Duran A, Cabral AD, Fonseca FLA, Bueno RF, Rosa DS. Questioning ZnO, Ag, and Ag/ZnO nanoparticles as antimicrobial agents for textiles: Do they guarantee total protection against bacteria and SARS-CoV-2? *J Photochem Photobiol B Biol.* 2022;234(August):112538. doi:10.1016/j.jphotobiol.2022.112538
2. Sundrarajan M, Ambika S, Bharathi K. Plant-extract mediated synthesis of ZnO nanoparticles using Pongamia pinnata and their activity against pathogenic bacteria. *Adv Powder Technol.* 2015;26(5):1294-1299. doi:10.1016/j.appt.2015.07.001
3. Saravanakumar K, Sakthivel P, Sankaranarayanan RK. Influence of Sn⁴⁺ ion on band gap tailoring, optical, structural and dielectric behaviors of ZnO nanoparticles. *Spectrochim Acta Part A Mol Biomol Spectrosc.* 2022;267:120487. doi:10.1016/j.saa.2021.120487
4. Veerabhadraiah SR, Maji S, Panneerselvam A. Solvent influence on the formation of ZnO nanoparticles by sonochemical technique and evaluation of UV-blocking efficiency. *J Cryst Growth.* 2022;579(July 2021):126430. doi:10.1016/j.jcrysgro.2021.126430
5. Silva DJ, Barbosa RFS, Souza AG, Ferreira RR, Camani PH, Rosa DS. Morphological, UV blocking, and antimicrobial features of multifunctional cotton fibers coated with ZnO/Cu via sonochemistry.

Mater Chem Phys. 2022;286(January):126210. doi:10.1016/j.matchemphys.2022.126210

6. Santibenchakul S, Sirijaturaporn P, Mekprasart W, Pechrapa W. Ga-doped ZnO nanoparticles synthesized by sonochemical-assisted process. *Mater Today Proc.* 2018;5(6):13865-13869. doi:10.1016/j.matpr.2018.02.030
7. Potdar SB, Praveen BVS, Sonawane SH. Sonochemical approach for synthesis of zinc oxide-poly methyl methacrylate hybrid nanoparticles and its application in corrosion inhibition. *Ultrason Sonochem.* 2020;68(May):105200. doi:10.1016/j.ultsonch.2020.105200
8. Khataee A, Karimi A, Zarei M, Joo SW. Eu-doped ZnO nanoparticles: Sonochemical synthesis, characterization, and sonocatalytic application. *Ultrason Sonochem.* 2020;67:102822. doi:10.1016/j.ultsonch.2015.03.016
9. Patil PP, Bohara RA, Meshram J V., Nanaware SG, Pawar SH. Hybrid chitosan-ZnO nanoparticles coated with a sonochemical technique on silk fibroin-PVA composite film: A synergistic antibacterial activity. *Int J Biol Macromol.* 2019;122:1305-1312. doi:10.1016/j.ijbiomac.2018.09.090
10. Khataee A, Karimi A, Arefi-Oskoui S, et al. Sonochemical synthesis of Pr-doped ZnO nanoparticles for sonocatalytic degradation of Acid Red 17. *Ultrason Sonochem.* 2015;22:371-381. doi:10.1016/j.ultsonch.2014.05.023
11. Khataee A, Soltani RDC, Karimi A, Joo SW. Sonocatalytic degradation of a textile dye over Gd-doped ZnO nanoparticles synthesized through sonochemical process. *Ultrason Sonochem.* 2015;23:219-230. doi:10.1016/j.ultsonch.2014.08.023
12. Gupta A, Srivastava R. Mini submersible pump assisted sonochemical reactors: Large-scale synthesis of zinc oxide nanoparticles and nanoleaves for antibacterial and anti-counterfeiting applications. *Ultrason Sonochem.* 2019;52(December 2018):414-427. doi:10.1016/j.ultsonch.2018.12.020
13. Hozyen HF, Ibrahim ES, Khairy EA, El-Dek SI. Enhanced antibacterial activity of capped zinc oxide nanoparticles: A step towards the control of clinical bovine mastitis. *Vet World.* 2019;12(8):1225-1232. doi:10.14202/vetworld.2019.1225-1232
14. Ahmed W, Chowdhury ZZ, Kazi SN, Johan M, Akram N, Oon CS. Effect of ZnO-water based nanofluids from sonochemical synthesis method on heat transfer in a circular flow passage. *Int Commun Heat Mass Transf.* 2020;114(April):104591. doi:10.1016/j.icheatmasstransfer.2020.104591
15. Cai M, Shui A, Wang X, He C, Qian J, Du B. A facile fabrication and high-performance electromagnetic microwave absorption of ZnO nanoparticles. *J Alloys Compd.* 2020;842:155638. doi:10.1016/j.jallcom.2020.155638
16. Abdelghani GM, Ahmed AB, Al Zubaidi AB. Synthesis, characterization, and the influence of energy of irradiation on optical properties of ZnO nanostructures. *Scientific Reports.* 2022;12:20016. doi.org/10.1038/s41598-022-24648-x