

DEPOSISI LAPISAN TIPIS ZnO:Ag DAN APLIKASINYA UNTUK DEGRADASI POLUTAN ORGANIK

Sheilla Rully Anggita¹ dan Heri Sutanto^{2*}

¹Prodi Magister Ilmu Fisika, Fakultas Sains dan Matematika, Universitas Diponegoro

²Jurusan Fisika, Fakultas Sains dan Matematika, Universitas Diponegoro

* Korespondensi Penulis, Email : herisutanto@undip.ac.id

Abstract

Zinc Oxide (ZnO) is a semiconductor material that is used for photo-catalyst to degrade organic pollutants. The addition of doping silver (Ag) in ZnO can increase the photo-catalytic activity in the degradation process. In this study, the addition of doping Ag in ZnO thin film on a glass substrate deposition using thermal spray coating method has influence on the micro-structure and photo-degradation in presence of bacteria *Escherichia coli* (*E. coli*) as an organic pollutants has been investigated. Micro-structure of ZnO : Ag layer were characterized by Scanning Electron Microscopy (SEM) and photo-degradation activities of bacteria were tested with Total Plate Counter (TPC). The results show that doping Ag in ZnO give affect the topography of the surface that can increase in amount of grains and grain size in order to increase the photo-catalytic activity. It indicated by decrease in amount of *E. coli* bacteria from the initial sample with percentage of degradation is 99,99951%

Keyword: Semiconductor, photo-catalyst, ZnO, doping Ag, micro-structure, photo-degradation

Abstrak

Seng Oksida (ZnO) adalah bahan semikonduktor yang baik digunakan sebagai fotokatalis untuk mendegradasi polutan organik. Dengan penambahan doping perak (Ag) dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitik dalam proses degradasi. Pada penelitian ini penambahan doping Ag pada lapisan tipis ZnO yang dideposisikan di atas substrat kaca menggunakan metode thermal spray coating memiliki pengaruh terhadap mikrostruktur dan fotodegradasi keberadaan bakteri *Escherichia coli* (*E.coli*) sebagai polutan organik telah diteliti. Bentuk mikrostruktur lapisan ZnO:Ag dikarakterisasi dengan Scanning Electron Microscopy (SEM) dan aktivitas fotodegradasi jumlah bakteri diuji dengan Total Plate Counter (TPC). Hasil penelitian menunjukkan bahwa doping Ag yang diberikan pada ZnO mempengaruhi topografi dari permukaan lapisan ZnO dengan bertambahnya banyak bulir dan ukuran bulir sehingga dapat meningkatkan aktifitas fotokatalis. Hal ini ditunjukkan dengan penurunan jumlah bakteri *E.coli* dari sampel awal dengan prosentase degradasi sebesar 99,99951%.

Kata kunci: Semikonduktor, fotokatalis, ZnO, doping Ag, mikrostruktur, fotodegradasi.

Pendahuluan

Fotokatalisis heterogen saat ini sedang dianggap sebagai teknik yang menjanjikan untuk pemurnian air dibandingkan dengan metode konvensional lainnya [1,2]. Proses pemurnian air ini menggunakan prinsip semikonduktor. Proses fotokatalis tersebut terjadi apabila energi dari sinar yang diberikan sesuai dengan energi celah pita (*band gap energy*) dari

material semikonduktor, sehingga akan terjadi transformasi kimia [3].

Salah satu semikonduktor yang kini menjadi perhatian para peneliti sebagai material fotokatalis adalah Seng Oksida (ZnO). Semikonduktor yang berbasis fotokatalis ini memiliki kemampuan degradasi polutan yang lebih efektif, ekonomis, dan ramah lingkungan [4]. Beberapa penelitian dengan beberapa metode telah dilakukan untuk meningkatkan aktifitas

fotokatalitik dari ZnO, salah satu diantaranya adalah dengan mendoping nanostruktur logam transisi ke dalam ZnO. Dengan meningkatkan konsentrasi doping logam transisi pada ZnO, maka tingkat energinya akan berubah sehingga dapat meningkatkan sifat fisik maupun sifat optiknya [5].

Logam transisi perak (Ag) merupakan doping yang cocok untuk ZnO dalam meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya. Selain itu, doping Ag memiliki keunggulan yakni sifatnya sebagai antibakteri, yang mana digunakan untuk mengontrol pertumbuhan bakteri dalam berbagai aplikasi [6]. Pada penelitian sebelumnya telah dilakukan deposisi ZnO didoping Ag dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitiknya [7]. Telah banyak metode yang dilakukan untuk mendeposisikan lapisan tipis ZnO:Ag, seperti *coprecipitation* [5], *spray pyrolysis* [8], dan *sol-gel* [9].

Sehingga dari latar belakang permasalahan yang ada, maka dalam penelitian ini akan dilakukan pendeposisian lapisan tipis ZnO:Ag menggunakan metode *sol gel* di atas substrat kaca dengan *thermal spray-coating* yang berfungsi sebagai fotokatalis dalam mendegradasi polutan organik. Sehingga akan dipelajari mikrostruktur dan pengaruhnya dalam mendegradasi keberadaan bakteri *E. coli* sebagai polutan organik.

Metode Penelitian

Penelitian ini dibagi menjadi 3 tahap, yaitu: proses pembuatan sol gel ZnO dan ZnO:Ag, proses pelapisan ZnO dan ZnO:Ag pada substrat kaca, dan karakterisasi lapisan ZnO:Ag menggunakan uji *Scanning Electron Microscopy* (SEM) beserta pengujian jumlah bakteri *E.coli* dengan *Total Plate Counter* (TPC).

Proses pembuatan larutan ZnO dan ZnO:Ag dilakukan dengan menggunakan metode *sol-gel*.

Mekanisme pembuatan larutan tersebut yaitu; *Zinc Asetat di hidrat* ($\text{Zn}(\text{COOCH}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) dilarutkan ke dalam 2-Propanol ($\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_3$) pada temperatur ruang dengan konsentrasi dari *Zinc Asetat* 0,3 M. Kemudian *Monoethanolamine* (MEA) diteteskan ke dalam larutan dan diaduk menggunakan pengaduk magnetik pada temperatur 70°C selama 30 menit, sehingga menjadi *sol-gel* ZnO. Untuk mendapatkan *sol-gel* ZnO:Ag, larutan ZnO kemudian ditambahkan doping Ag dengan konsentrasi 4% dan proses pengadukan dilanjutkan hingga didapatkan larutan *sol-gel* ZnO:Ag 4% yang homogen sekitar 30 menit.



Gambar 1. Teknik *thermal spray coating*

Sebelum proses deposisi, substrat kaca dibersihkan terlebih dahulu dengan metode RCA (*Radio Corporation of America*) yaitu kaca dicuci dengan *acetone* dan *methanol* selama 10 menit dengan sistem pencuci ultrasonik untuk menghilangkan pengotor organik seperti lemak dan minyak. Selanjutnya kaca dicuci dengan *Aquabides* selama 8 menit dan dikeringkan dengan disemprot kompresor.

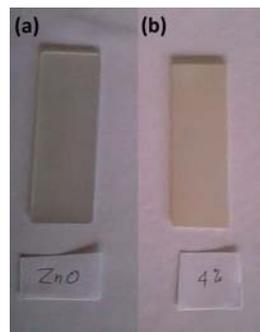
Substrat kaca yang telah kering diletakkan di atas *hot plate* dengan suhu 250°C selama 10 menit. Kemudian proses deposisi lapisan tipis ZnO dan ZnO:Ag di atas substrat kaca dilakukan dengan teknik *thermal spray coating*

yaitu substrat di spray dengan larutan *sol-gel* ZnO secara merata dengan suhu 250°C selama 1 jam. Perlakuan yang sama juga diberikan untuk penyemprotan ZnO:Ag di atas substrat kaca. Setelah proses deposisi, annealing dilakukan dengan suhu 450°C selama 1 jam.

Hasil pengujian mikrostruktur lapisan ZnO dan ZnO:Ag menggunakan alat *Scanning Electron Microscopy* (SEM). Data yang diperoleh digunakan untuk menganalisis bentuk permukaan dari ZnO tanpa doping dan ZnO setelah diberikan dopan Ag. Kemudian, untuk pengujian aktivitas fotokatalitik dari ZnO dan ZnO:Ag 4% dengan melakukan irradiasi ZnO dan ZnO:Ag 4% di bawah sinar matahari. Larutan berisi persemiaan bakteri *E.coli* sebanyak 30 ml, dituangkan ke dalam wadah yang telah berisi lapisan ZnO dan ZnO:Ag 4%. Selanjutnya proses fotodegradasi dilakukan dengan penyinaran matahari pada sampel dengan lama irradiasi 4 jam. Kemudian sampel diuji dengan *Total Plate Counter* (TPC) untuk mengetahui jumlah keberadaan bakteri dari hasil fotodegradasi ZnO dan ZnO:Ag.

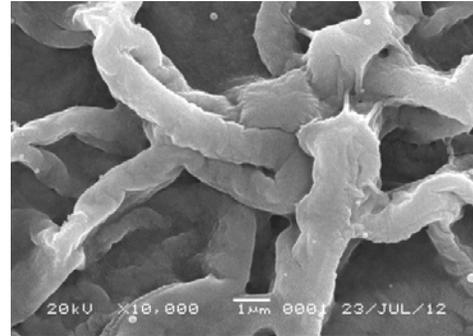
Hasil dan Pembahasan

Deposisi lapisan ZnO dan ZnO:Ag 4% yang dideposisikan di atas substrat kaca dengan teknik *thermal spray coating* telah dilakukan dan hasil deposisi ditunjukkan pada gambar 1.

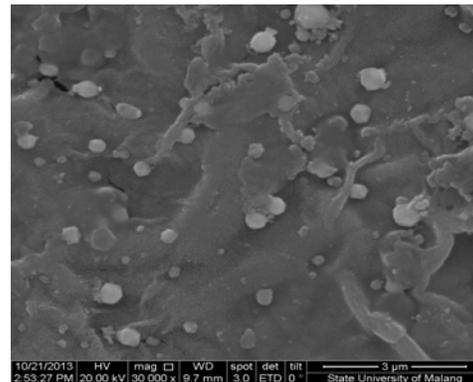


Gambar 3. Lapisan ZnO dan ZnO:Ag (a) ZnO dan (b) ZnO:Ag 4%

Lapisan tipis ZnO dan ZnO:Ag dengan konsentrasi doping Ag 4% setelah diuji dengan *Scanning Electron Microscopy* didapatkan hasil topografi mikrostruktur dari ZnO dan ZnO:Ag ditunjukkan pada gambar 2 dan 3.



Gambar 4. Citra SEM pada Lapisan ZnO tanpa doping



Gambar 5. Citra SEM pada lapisan ZnO dengan doping Ag 4%

Citra hasil pengujian SEM memperlihatkan keadaan permukaan dari lapisan tipis ZnO dan ZnO:Ag. Gambar 2 menunjukkan citra SEM ZnO tanpa adanya doping dengan perbesaran 10.000 kali berbentuk *rods* dengan adanya beberapa bulir kecil, sedangkan gambar 3 menunjukkan citra SEM ZnO:Ag dengan perbesaran 30.000 kali berbentuk *rods* yang ditutupi oleh banyak bulir-bulir yang berukuran rata-rata 304,8 nm. Terlihat pada gambar 3 dengan

ditambahkannya doping perak (Ag) membuat lapisan ZnO semakin banyak bulir yang diperkirakan sebagai Ag yang menutupi ZnO. Hal tersebut sesuai dengan hasil peneliti lain yang menghasilkan bentuk mikrostruktur dari ZnO:Ag berupa bulir-bulir. Bentuk mikrostruktur ini serupa dengan penelitian yang telah dilakukan oleh Habibi M.H., *et.al.* yang telah berhasil mendeposisikan ZnO doping Ag dengan metode sol gel dan photochemical berbentuk bulir-bulir [10].

Dengan adanya penambahan doping Ag ke dalam ZnO selain mempengaruhi mikrostruktur lapisan, doping Ag ini juga mempengaruhi aktivitas fotokatalitiknya yang ditunjukkan dengan unjuk kerja pada fotodegradasi jumlah bakteri *E. coli* yang bertindak sebagai polutan organik. Reaksi fotodegradasi dilakukan dengan menjemur wadah yang berisikan lapisan tipis ZnO dan ZnO:Ag 4% yang dicelupkan ke dalam 30 ml air persemiaan bakteri *E.coli* dibawah sinar matahari dengan variasi waktu penyinaran 4 jam.

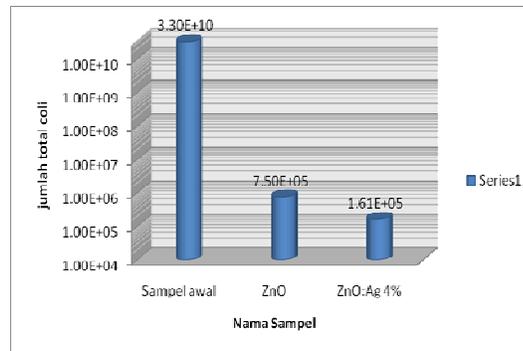
Hasil pengujian fotodegradasi bakteri *E. coli* dengan adanya lapisan ZnO dan ZnO:Ag dengan data TPC adalah sebagai berikut:

Tabel 1. Jumlah dan prosentase degradasi dari keberadaan bakteri *E.coli*

Nama Sampel	Total E.coli	% Degradasi
Sampel awal	3.30E+10	0
ZnO	7.50E+05	99.99773
ZnO:Ag 4%	1.61E+05	99.99951

Dari tabel 1 dapat diketahui hasil pengujian dari jumlah total bakteri *E.coli* dan besarnya prosentase degradasi oleh ZnO dan ZnO:Ag. Dari tabel terlihat terjadi penurunan jumlah bakteri dari sampel awal sebesar $3,3 \times 10^{10}$ setelah diberikan perlakuan dengan irradiasi sinar matahari terhadap lapisan

tipis ZnO dan ZnO:Ag. Hasil yang diperoleh dapat diketahui bahwa dengan penambahan doping Ag pada ZnO menambah kemampuan dalam mendegradasi yang lebih baik daripada ZnO tanpa doping. Hal ini dikarenakan dopan Ag pada ZnO memiliki sifat antibakteri [6] sehingga dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitik dari ZnO [7]. Dari data TPC (tabel 1) dapat dibuat grafik jumlah bakteri *E.coli* pada gambar 6 sebagai berikut.



Gambar 6. total *E.coli* setelah irradiasi sampel selama 4 jam dengan sinar matahari

Gambar 6 memperlihatkan proses pereduksian bakteri *E. coli* dalam air yang diiradiasi dengan lapisan tipis ZnO dan ZnO:Ag selama selang waktu 4 jam. Dengan adanya doping Ag 4% pada ZnO:Ag mampu mereduksi lebih baik dari ZnO. Dapat terlihat dari gambar 6, grafik batang ZnO:Ag 4% dengan jumlah bakteri $1,61 \times 10^5$ menurun jika dibandingkan dengan grafik batang pada ZnO yakni sebesar $7,5 \times 10^5$.

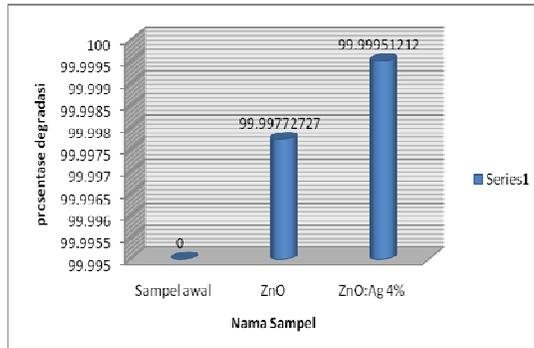
Untuk menghitung besarnya prosentase degradasi adalah dengan persamaan (3):

Error! Reference source not found. % degradasi = **Error! Reference source not found.** $(C_o - C_t) / C_o \times 100\%$ (3)

dengan C_o adalah konsentrasi awal, C_t adalah konsentrasi akhir [11].

Besarnya kenaikan prosentase degradasi bakteri *E.coli* oleh ZnO dan

ZnO:Ag ditunjukkan gambar 5 sebagai berikut.



Gambar 7. Prosentase degradasi *E.coli* oleh ZnO dan ZnO:Ag 4%

Hasil yang diperoleh dari penelitian sesuai dengan gambar 7 menunjukkan bahwa dengan penambahan doping Ag sebesar 4% pada ZnO mampu mendegradasi keberadaan bakteri *E.coli* hampir sempurna yakni 99,99951%. Lapisan ZnO:Ag 4% merupakan material fotokatalis yang mampu mendegradasi keberadaan bakteri *E.coli* yang lebih baik dibandingkan dengan ZnO, hal ini ditunjukkan dengan besarnya prosentase degradasi ZnO:Ag dibandingkan prosentase degradasi ZnO yang hanya mencapai 99,99773%.

Kesimpulan

Deposisi lapisan ZnO dan ZnO:Ag 4% telah berhasil ditumbuhkan di atas substrat kaca dengan metode *thermal spray coating*, dan telah dipelajari juga mikrostruktur beserta aplikasinya dalam mendegradasi keberadaan bakteri *E.coli* dalam air. Dengan penambahan doping Ag pada ZnO mempengaruhi bentuk mikrostrukturnya yakni bertambahnya banyak bulir dan ukuran bulir dengan ukuran rata-rata 304,8 nm pada nanorods ZnO. Perubahan bentuk mikrostruktur ini juga berpengaruh pada

aktivitas fotokatalitiknya. Dengan adanya penambahan doping Ag pada ZnO membuat aktivitas fotokatalitiknya menjadi lebih baik dari ZnO tanpa doping. Hal ini dapat dibuktikan dengan semakin menurunnya jumlah keberadaan bakteri *E.coli* setelah diberikan ZnO:Ag dibandingkan ZnO. Selain itu, besarnya prosentase degradasi ZnO:Ag sebesar 99,99951% lebih besar dibandingkan prosentase degradasi ZnO yang hanya sebesar 99,99773%.

Ucapan Terima Kasih

Peneliti menyampaikan terima kasih banyak atas pendanaan penelitian oleh DPPM DIKTI tahun 2013.

Referensi

- [1] Baruah, S., Dutta, J. 2009, *Nanotechnology applications in pollution sensing and degradation in Agriculture, a review*. Environ. Chem. Lett., **7**: 1-14..
- [2] Sugunan, A., Dutta, 2008, J. *Pollution Treatment, Remediation, and Sensing*. In *Nanotechnology*, Harald, K., Ed. Wiley-VCH: Weinheim,; Vol. 3
- [3] Fujishima A., Rao T. N, Tryk D. A, 2000, *Titanium Dioxide Photocatalysis*. Journal of Photochemistry and Photobiology, C: Photochemistry Reviews 1, 1-21.
- [4] Jia Zhi-Gang, Peng Kuan-Kuan, Li Yan-Hua, Zhu Rong-Sun, 2012, *Preparation and photocatalytic performance of Porous ZnO microrods loaded with Ag*, Journal of Trans. Nonferrous Met. Soc. **22**, 873-878.
- [5] Chauhan, R., Kumar A., Chaudary R. P, 2010, *Synthesis and Characterisation of Silver Doped ZnO Nanoparticles*, journal of Sholar Research Library **2**, 378-385.

- [6] Jun Sung Kim, Eunye Kuk, Kyeong Nam Yu, Jong-Ho Kim, Sung Jin Park, Hu Jang Lee, So Hyun Kim, Young Kyung Park, Yong Ho Park, Cheol-Yong Hwang, Yong-Kwon Kim, Yoon-Sik Lee, Dae Hong Jeong, Myung-Haing Cho, 2007, *Antimicrobial Effects of Silver Nanoparticles*, Science-Direct Nanomedicine: Nanotechnology, Biology, and Medicine 3, 95– 101.
- [7] Tarwal, N. L., Patil P. S., 2011, *Enhanced photoelectrochemical performance of Ag–ZnO thin films synthesized by spray pyrolysis technique* .56, 6510-6516.
- [8] Dermenci, K. B., Ebin B., Gürmen S., 2012, *Production of Spherical Ag/ZnO Nanocomposite Particles for Photocatalytic Applications*, World Academy of Science, Engineering and Technology 67.
- [9] Shah A. H., Manikandan E., Ahmed M. B., Ganesan V., 2013, *Enhanced Bioactivity of Ag/ZnO Nanorods-A Comparative Antibacterial Study*, J. Nanomed Nanotechol, 4:3
- [10] Habibi, M. H., Sheibani R., 2013, *Nanostructure Silver-Doped Zinc Oxide Films Coating on Glass Prepared by Sol–Gel and Photochemical Deposition Process: Application for Removal of Mercaptan*, Journal of Industrial and Engineering Chemistry 19, 161– 165.
- [11] Amornpitoksuk, P., Suwanboon S., Sangkanu S., Sukhoom A., Muensit N., Baltrusaitis J., 2012, *Synthesis, Characterization, Photocatalytic, and Antibacterial Activities of Ag-doped ZnO Powder Modified with a Diblock Copolymer*, Journal of Powder Technology 219: 158-164.