

p-ISSN: 2549-0516

e-ISSN: 2549-7014

J I I F

JURNAL ILMU DAN INOVASI FISIKA

Volume 06, Nomor 01, 2022



Jiif Jurnal Ilmu dan Inovasi Fisika

Volume 06 No. 01 Februari 2022

Penanggung Jawab

Kepala Departemen Fisika FMIPA Unpad

Ketua Editor:

Dr. Sahrul Hidayat (Fisika, UNPAD)

Editor Pelaksana :

Dr. Dadan Hamdani (Fisika, UNMUL)

Dr. Otong Nurhilal (Fisika, UNPAD)

Dr. Darmawan Hidayat (T. Elektro, UNPAD)

Dr. Risa Suryana (fisika, UNS)

Peer Reviewer:

Prof. Dr. Risdiana (Fisika, UNPAD)

Prof. Dr. Camellia Panatarani (Fisika, UNPAD)

Prof. Dr. I Made Joni (Fisika, UNPAD)

Prof. Dr. Ayi Bahtiar (Fisika, UNPAD)

Dr. Fitriawati (Fisika, UNPAD)

Dr. Esmar Budi (Fisika, UNJ)

Dr. Nowo Riveli (Fisika, UNPAD)

Dr. Rahmat Hidayat (Fisika, ITB)

Dr. Annisa Aprilia (Fisika, UNPAD)

Prof. Dr. Yudi Rosandi (Geofisika, UNPAD)

Dr. Asep Harja, (Geofisika, UNPAD)

Jurnal Ilmu dan Inovasi Fisika (JIIF) merupakan jurnal ilmiah yang memuat hasil-hasil penelitian yang mencakup kajian teoretik, simulasi dan modeling, eksperimen, rekayasa dan eksplorasi dalam bidang Fisika dan Aplikasinya. Jurnal ini terbit secara berkala sebanyak dua kali dalam setahun (Februari dan Agustus). Redaksi menerima naskah ilmiah hasil penelitian, pikiran dan pandangan, review, komunikasi singkat dalam bidang Fisika dan Aplikasinya. Petunjuk penulisan artikel tersedia di dalam setiap terbitan dan secara online. Artikel yang masuk akan melalui proses seleksi mitra bebestari dan disetujui oleh dewan editor.

Penerbit: Departemen Fisika FMIPA Unpad

Terbit pertama kali: 2017

Terbit dua kali setahun (Februari, Agustus)

Alamat Editor:

Sekretariat Jurnal Ilmu dan Inovasi Fisika (JIIF)

Departemen Fisika Fakultas MIPA Universitas Padjadjaran

Jl. Raya Jatinangor Sumedang 45363

Telpon: 022 779 6014, Fax: 022 779 2435

Alamat email jurnal: jiif@phys.unpad.ac.id

Website: <http://jurnal.unpad.ac.id/jiif>

JlIF Jurnal Ilmu dan Inovasi Fisika

Volume 06 No. 01 Februari 2022

Daftar Isi

	Hal
Pengaruh Rapat Cacat Dangling-Bond Lapisan (p)a-Si:H Pada Kinerja Sel Surya Struktur p-i-n <i>Dadan Hamdani</i>	1 – 13
Sintesis Kristal Tunggal Perovskite MAPbBr₃ Menggunakan Metode Inverse Temperature Crystallization untuk Aplikasi Fotodetektor Sinar-X <i>Rossyaila Matsna Muslimawati</i>	14 – 22
Rendemen dan Karakteristik Kimia Fisik Biodiesel dari Transesterifikasi Minyak Biji Kapuk Terozonasi dengan Bantuan Gelombang Ultrasonik <i>Haryono</i>	23 – 32
Studi Komputasi Efek Sonofisika dari Gelembung Mikro terhadap Deformasi Lapisan Logam <i>David</i>	33 – 40
Pengaruh Cross-Equatorial Northerly Surge terhadap Kejadian Banjir di Jakarta (Studi Kasus 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020) <i>Bella Puspita Dewi</i>	41 – 52
Analisis Morfologi dan Struktur Karbon Aktif Kulit Salak Wedi dengan Aktivator Bertingkat <i>Aprillia Dwi Ardianti</i>	53 – 60
Studi Sifat Elektronik Pyrochlore Nd₂Ir₂O₇ Menggunakan DFT <i>Nurannisa Wahyuni</i>	61 – 71
Kajian Pertumbuhan dan Persebaran Awan Hujan pada Saat Banjir Berbasis Data Satelit Himawari-8 (Studi Kasus : Banjir di Kab. Kerinci dan Kota Sungai Penuh 4 Juni 2020) <i>Iqbal Gusranda</i>	72 – 80
Uji Filtrasi Model Polutan Methylen Blue Menggunakan Membran Kulit Telur <i>Fitrilawati</i>	81 – 89
Pembuatan dan Karakterisasi Struktur dan Morfologi Lapisan ZnO:Al/GO Submicron-Rods sebagai Material Aktif Fotokatalis <i>Annisa Nur Rahmawati</i>	90 – 101

PENGARUH RAPAT CACAT DANGLING-BOND LAPISAN (p)a-Si:H PADA KINERJA SEL SURYA STRUKTUR p-i-n

DADAN HAMDANI ^{1,*}, LAMBANG SUBAGIYO ², D. DARMINTO ^{3,+}

¹Jurusan Fisika, FMIPA, Universitas Mulawarman
Jl. Barong Tongkok No. 4 Kampus FMIPA Universitas Mulawarman, 75123, Samarinda,
Kalimantan Timur, Telp. (0541) 749140

²Jurusan Pendidikan Fisika, FKIP, Universitas Mulawarman
Jl. Muara Pahu, Kampus FKIP Universitas Mulawarman, 75123, Samarinda, Kalimantan Timur,
Telp. (0541) 743651

³Departemen Fisika, FSAD, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Kampus ITS, Keputih, Kec. Sukolilo, 60117, Surabaya, Jawa Timur, Telp. (031) 5943351

*email : d.hamdani1973@gmail.com

+email : darminto@physics.its.ac.id

Abstrak. Validasi numerik terhadap sel surya homojunction berbasis a-Si:H hasil eksperimen secara fisis dianalisis menggunakan perangkat AFORS-HET (Automat FOR Simulation of HETerosturcture) dengan meninjau pengaruh cacat dangling-bond (DB) pada lapisan (p)a-Si:H (N_{tr}) terhadap kinerja sel surya struktur TCO/(p)a-Si:H/(i)a-Si:H/(n)a-Si:H/Ag. Variasi N_{tr} diberikan sesuai dengan hasil eksperimen antara 5.0×10^{17} – 5.0×10^{19} cm^{-3}/eV yang dioperasikan pada ketebalan lapisan-p berbeda disertai dengan analisis diagram pita energi, kurva karakteristik J-V, profil medan listrik, dan konsentrasi pembawa muatan. Hasil simulasi menunjukkan bahwa sel surya bekerja secara optimum jika nilai parameter N_{tr} mampu dikontrol untuk nilai $<5.0 \times 10^{18}$ cm^{-3}/eV , dimana pada kondisi ini efisiensi yang bisa dicapai sekitar 7.68% ($V_{OC} = 947.2$ mV, $J_{SC} = 10.84$ mA/cm²; FF = 74.82%) pada ketebalan lapisan-p sekitar 10 nm.

Kata kunci: (p)a-Si:H, AFORS-HET, dangling-bond (DB), efisiensi

Abstract. Numerical validation of homojunction solar cells based on a-Si:H experimental results were physically analyzed using the AFORS-HET (Automat FOR Simulation of HETerosturcture) simulator by reviewing the effect of dangling-bond (DB) defects on the (p)a-Si:H layer (N_{tr}) on the performance of solar cell structure TCO/(p)a-Si:H/(i)a-Si:H/(n)a-Si:H/Ag. The variation of the N_{tr} is given according to the experimental results between 5.0×10^{17} – 5.0×10^{19} cm^{-3}/eV operated at different thicknesses of the p-layer accompanied by analysis of the energy band diagram, J-V characteristic curve, electric field profile, and charge carrier concentration. The simulation results show that the solar cell works optimally if the N_{tr} parameter value can be controlled for a value of $<5.0 \times 10^{18}$ cm^{-3}/eV , where in this condition the efficiency that can be achieved is around 7.68% ($V_{OC} = 947.2$ mV, $J_{SC} = 10.84$ mA/cm²; FF = 74.82%) with p-layer thickness is 10 nm.

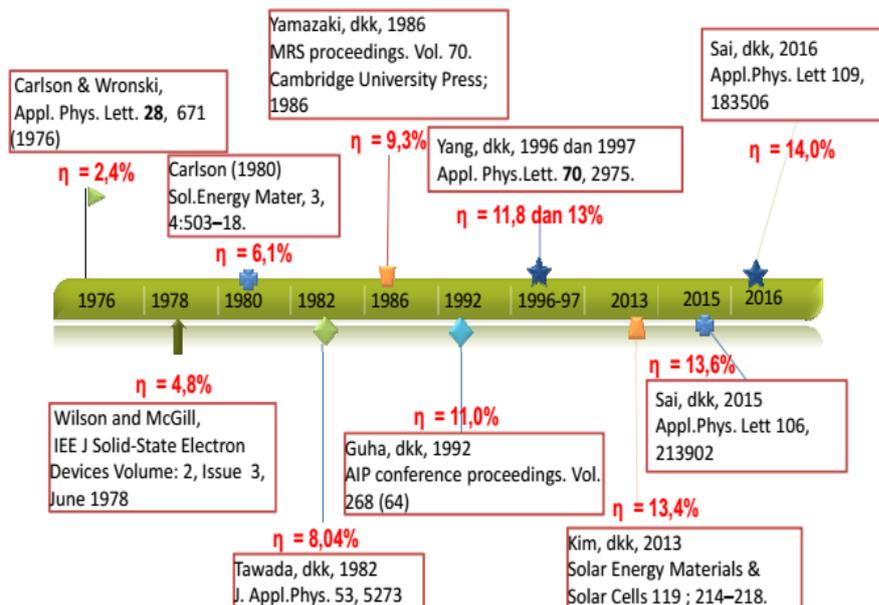
Keywords: (p)a-Si:H, AFORS-HET, dangling-bond (DB), efficiency

1. Pendahuluan

Teknologi sel surya berbasis film tipis dapat dijadikan sebagai alternatif dalam pengembangan teknologi fotovoltaik (PV) didasarkan pada beberapa kelebihan yang dimilikinya, diantaranya fleksibel dalam penggunaan material dengan celah pita optik yang cukup lebar, secara alami tidak beracun, berbiaya rendah, temperatur proses rendah, tahapan fabrikasi yang sederhana, serta dapat diproduksi

dalam skala yang besar [1]. Sel surya berbasis film tipis, seperti halnya silikon amorfus terhidrogenisasi (a-Si:H), *nanocrystalline silicon* (nc-Si:H), CdTe, CIGS, *Dye-Sensitized Solar Cells* (DSSCs), *Organic Solar Cells* (OSCs), dan *Perovskite Solar Cells* (PSCs) dikembangkan dengan biaya murah dan sumber bahan baku yang melimpah di alam, dimana dengan pencapaiannya sekarang sudah mampu bersaing dengan teknologi sel surya berbasis c-Si [2–5].

Sel surya film tipis berbasis silikon amorf (a-Si) memiliki perilaku terkait struktur orde jangkauan pendeknya (amorf) dan keberadaan ikatan lepas (*dangling bond*, DB) yang berimbas pada perilaku sifat optoelektroniknya yang mempengaruhi efisiensi konversi a-Si, sehingga upaya inovasi dilakukan dengan pasivasi hidrogen yang menghasilkan silikon amorf terhidrogenisasi (a-Si:H), tetapi upaya ini menyebabkan terjadinya penurunan konduktivitas sel surya pada saat dipapar cahaya secara kontinu yang dikenal dengan efek Staebler-Wronski (SWE) [6]. Efek SWE terjadi akibat keberadaan atom H dalam ikatan yang menghasilkan peningkatan rapat keadaan cacat ikatan lepas yang terjadi oleh rekombinasi non-radiatif (*non-radiative recombination*) antara elektron dan hole foto-eksitasi (*photoexcited*) pada ikatan lemah Si-Si yang menghubungkan dengan ikatan SiHHSi, serta cacat yang lain yang berkaitan dengan susunan acak atom-atom Si [7]. Pengembangan sel surya berbasis a-Si:H sudah dilakukan dalam kurun waktu 1976-2016 dengan berbagai inovasi dilakukan dalam meningkatkan efisiensi konversinya untuk bisa bersaing dengan teknologi sel surya lainnya, misalnya yang berbasis kristalin silikon (c-Si), dimana efisiensi tertinggi untuk sel surya berbasis a-Si:H dengan struktur *triple-junction* diperoleh sekitar 14.01%, seperti ditunjukkan pada Gambar.1 [8].



Gambar 1. Evolusi peningkatan efisiensi sel surya berbasis a-Si dari tahun ke tahun

Pengembangan sel surya berbasis a-Si:H terus dilakukan, diantaranya upaya peningkatan kualitas lapisan penyusun sel surya p-i-n yang dideposisi menggunakan teknik rf-PECVD memiliki variasi celah pita energi optik antara 1,65–1,84 eV yang diperoleh dari pengenceran hidrogen ($R = [H_2]/[SiH_4] = 0, 16, \text{ dan } 36$ yang menunjukkan peningkatan nilai celah pita energi optik dan penurunan

transmitansi dengan bertambahnya R [9]. Lapisan (i)a-Si:H memegang peranan penting dalam pembangkitan pasangan elektron-hole, sehingga harus memiliki sifat-sifat transport listrik dan kemampuan absorpsi cahaya yang baik. Penambahan doping PH₃ (Phosphine) dengan konsentrasi rendah terhadap lapisan intrinsik menghasilkan peningkatan kinerja sel surya a-Si:H dengan efisiensi 8.85% ($V_{OC} = 0.68$ V; $J_{SC} = 19.43$ mA/cm²; FF = 0.67) yang dicapai untuk doping lapisan intrinsik dengan konsentrasi PH₃ sekitar 780 ppm [10]. Selain itu, modifikasi sel surya struktur p-i-n dengan penambahan lapisan intrinsik dengan celah pita energi berbeda menjadi struktur p-i₁-i₂-n memberikan dampak pada peningkatan efisiensi dari 5.61% menjadi 8.86% yang terjadi akibat peningkatan penyerapan cahaya pada lapisan intrinsik sehingga pasangan elektron-hole yang terbentuk menjadi lebih tinggi yang mampu meningkatkan *photogenerated current* dan mengurangi proses rekombinasi pada lapisan intrinsik [11].

Penggunaan simulasi berbantuan komputer digunakan untuk membantu memberikan gambaran dalam pengembangan sel surya berbasis a-Si:H, salah satunya adalah perangkat AFORS-HET (*open source*) yang dikembangkan oleh Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB) digunakan untuk mensimulasi sel surya p-i-n berbasis a-Si:H dengan meninjau variasi ketebalan, konsentrasi doping, celah pita energi, penggunaan lapisan TCO (*transparent conductive oxide*), optimasi celah pita energi untuk sel surya *Bifacial Solar Cells* (BFSCs) dilakukan untuk mendapatkan parameter optimum dalam upaya peningkatan efisiensi sel surya a-Si:H [12–14].

Berdasarkan uraian di atas, maka dalam penelitian ini dilakukan pemodelan dan simulasi sel surya struktur TCO/(p)a-Si:H/(i)a-Si:H/(n)a-Si:H/Ag hasil eksperimen dengan teknik rf-PECVD yang diperoleh dari Benigno dan Darminto [15] didasarkan pada tinjauan pengaruh rapat cacat (DOS) pada lapisan (p)a-Si:H (N_{tr}) menggunakan perangkat AFORS-HET dapat digunakan sebagai landasan dalam melakukan fabrikasi, analisis stabilitas dan analisis kinerja sel surya struktur p-i-n a-Si:H.

2. Metode Penelitian

Setiap lapisan semikonduktor sel surya dinyatakan dalam persamaan Poisson dan persamaan transport untuk elektron dan hole dipecahkan dalam model persamaan 1D. Model lapisan “*bulk*” dalam AFORS-HET untuk menjelaskan model matematis sel surya p-i-n menggunakan model Standar Semikonduktor [16]. Model persamaan Poisson dan persamaan transport yang dipecahkan pada setiap lapisan semikonduktor dinyatakan dalam bentuk 1D:

$$\frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r(x)}{q} \frac{\partial \psi^2(x, t)}{\partial x^2} = p(x, t) - n(x, t) + N_D(x) - N_A(x) + \sum_{trap} \rho_{trap}(x, t) \quad (1)$$

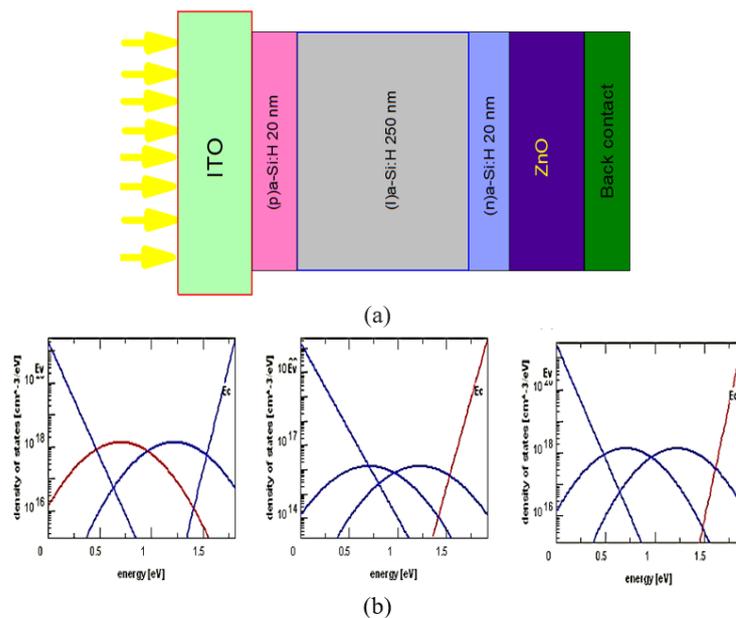
$$-\frac{1}{q} \left(\frac{\partial J_n(x, t)}{\partial x} \right) = G_n(x, t) + R_n(x, t) - \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} \quad (2)$$

$$+\frac{1}{q} \left(\frac{\partial J_p(x, t)}{\partial x} \right) = G_p(x, t) - R_p(x, t) - \frac{\partial p(x, t)}{\partial t} \quad (3)$$

dimana $\varepsilon_0 \varepsilon_r$ menyatakan konstanta dielektrik, $\psi(x, t)$ merupakan potensial listrik, q menyatakan muatan listrik, $n(x, t)$ dan $p(x, t)$ menyatakan rapat elektron dan

hole, $N_D(x)$ dan $N_A(x)$ menyatakan rapat doping (donor dan akseptor) pada titik x , ρ_{trap} menyatakan rapat cacat dari cacat muatan yang menunjukkan jumlah muatan yang terperangkap pada posisi energi E di dalam celah pita (tipe cacat dapat berupa keadaan tidak ditempati (*empty*) atau ditempati dengan elektron tunggal atau ganda, $G(x, t)$ menyatakan laju generasi pembawa muatan, $R(x, t)$ menyatakan laju rekombinasi, $J_n (J_p)$ menyatakan rapat arus elektron (hole).

Perangkat AFORS-HET bekerja berdasarkan hasil pemecahan persamaan Poisson 1D dan persamaan kontinuitas untuk elektron dan hole menggunakan Statistik rekombinasi Shockley–Read–Hall (SRH). Demikian pula untuk pembangkitan pasangan elektron-hole yang dihasilkan pada lapisan absorber diestimasi dengan menggunakan persamaan absorpsi Beer–Lambert menggunakan model optik dalam AFORS-HET. Rapat keadaan terlokalisasi (*localized state density*) menggambarkan lapisan a-Si:H yang dinyatakan sebagai *exponential band tail defect states (Urbach tails)* dan keadaan *Gaussian mid-gap (dangling bond)*. Gambar 2. Menunjukkan skema sel surya struktur TCO (ITO)/(p)a-Si:H/(i)a-Si:H/(n)a-Si:H/ZnO/Ag. Dalam simulasi, ketinggian barrier pada kontak belakang (ϕ_{bL}) ditentukan sebesar 0.2 eV ($\sim WB_{TCO} = 4.0$ eV) dan ketinggian barrier pada antar-muka ITO/(p) a-Si:H (ϕ_{b0}) ditentukan berdasarkan nilai fungsi kerja WF_{TCO} [17]. Asumsi bahwa pada bagian belakang struktur sel surya tidak disertai dengan pemantul belakang (R_B), sehingga koefisien refleksinya 0, dan koefisien refleksi kontak depan (R_F) dibuat sekitar 0.2 [18]. Sumber cahaya yang digunakan dalam simulasi menggunakan AM1.5G dengan rapat daya penyinaran (*power density*) 100 mW/cm² dan temperatur operasional perangkat sel surya dipertahankan pada 300 K. Dalam simulasi, pengaruh rapat cacat DB pada lapisan (p)a-Si:H terhadap kinerja sel surya ditinjau berdasarkan hasil eksperimen, yaitu antara $5.0 \times 10^{17} - 5.0 \times 10^{19}$ cm⁻³/eV yang dioperasikan dengan ketebalan lapisan (p)a-Si:H pada 10, 15 dan 20 nm yang dianalisis menggunakan kurva J-V, diagram pita energi, profil medan listrik, dan profil konsentrasi muatan [19].



Gambar 2. a) Skematik sel surya struktur TCO (ITO)/(p)a-Si:H/(i)a-Si:H/(n)a-Si:H/ZnO/Ag
 (b) Model DOS untuk lapisan-p, -i, dan -n

Tabel 1. Parameter input AFORS-HET untuk mensimulasi sel surya p-i-n a-Si:H

Material dan parameter kontak	(p)a-Si:H	(i)a-Si:H	(n)a-Si:H
Ketebalan (nm)	10-20	250	20
Konstanta dielektrik	11.9	11.9	11.9
Afinitas elektron (eV)	3.80	3.80	3.80
Celah pita (eV)	1.81	1.92	1.88
Rapat pita konduksi (valensi) efektif (cm ⁻³)	2.5 x 10 ²⁰	2.5 x 10 ²⁰	2.5 x 10 ²⁰
Konsentrasi akseptor, Na (cm ⁻³)	5.0 x 10 ¹⁷	0	0
Konsentrasi donor, Nd (cm ⁻³)	0	0	1.0 x 10 ¹⁹
Mobilitas electron (hole) (cm ² V ⁻¹ s ⁻¹)	10 (1)	20 (2)	10 (1)
Kecepatan termal elektron (hole) (cms ⁻¹)	1.0 x 10 ⁷	1.0 x 10 ⁷	1.0 x 10 ⁷
Parameter tail states	(p)a-Si:H	(i)a-Si:H	(n)a-Si:H
Rapat cacat pada konduksi (valensi) band edge (cm ⁻³ eV ⁻¹)	1.0 x 10 ²¹ (1.0 x 10 ²¹)	1.0 x 10 ²¹ (1.0 x 10 ²¹)	1.0 x 10 ²¹ (1.0 x 10 ²¹)
Energi Urbach pada konduksi (valensi) band tail (eV)	0.03(0.06)	0.03(0.06)	0.03(0.06)
Capture cross section σ_e (σ_h) untuk konduksi band tail (cm ²)	1.0 x 10 ⁻¹⁷ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)	1.0 x 10 ⁻¹⁷ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)	1.0 x 10 ⁻¹⁷ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)
Capture cross section σ_e (σ_h) untuk valensi band tail (cm ²)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁷)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁷)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁷)
Parameter Dangling-bond states	(p)a-Si:H	(i)a-Si:H	(n)a-Si:H
DOS Gaussian (cm ⁻³ /eV)	5.0 x 10 ¹⁷ -5.0 x 10 ¹⁹	8.0 x 10 ¹⁵	2.5 x 10 ²¹
Gaussian peak energy for donor(acceptor) (eV)	1.22(0.70)	1.22(0.70)	1.22(0.70)
Standard deviation of Gaussian for donor (acceptor) (eV)	0.23(0.23)	0.23(0.23)	0.23(0.23)
Capture cross section σ_e (σ_h) for donor-like Gaussian States (cm ²)	1.0 x 10 ⁻¹⁴ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)	1.0 x 10 ⁻¹⁴ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)	1.0 x 10 ⁻¹⁴ (1.0 x 10 ⁻¹⁵)
Capture cross section σ_e (σ_h) for acceptor-like Gaussian states (cm ²)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁴)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁴)	1.0 x 10 ⁻¹⁵ (1.0 x 10 ⁻¹⁴)

Parameter input lain yang digunakan dalam simulasi mengacu pada Tabel. 1 [15,17,20,21]. Parameter yang digunakan untuk mengukur kinerja sel surya yang diperoleh dengan mengekstraksi kurva J-V, meliputi [17]:

$$J_{sc} = J_L - J_0 \left(\exp \left(\frac{qV}{nKT} \right) - 1 \right) \quad (4)$$

$$V_{oc} = \frac{nKT}{q} \left(\ln \left(\frac{J_{sc}}{J_0} \right) + 1 \right) \quad (5)$$

$$E_{ff} = \frac{J_{sc} V_{oc} FF}{P_{in}} \quad (6)$$

$$FF = \frac{V_m J_m}{V_{oc} J_{sc}} = \frac{P_m}{V_{oc} J_{sc}} \quad (7)$$

dimana J_{sc} menyatakan rapat arus pada *short circuit current*, J_L menyatakan rapat arus foto, J_0 menyatakan rapat arus gelap balik, V menyatakan tegangan termal pada sambungan, KT menyatakan energi termal, n menyatakan faktor ideal, V_{oc} menyatakan tegangan rangkaian terbuka, V_m menyatakan tegangan maksimum, J_m

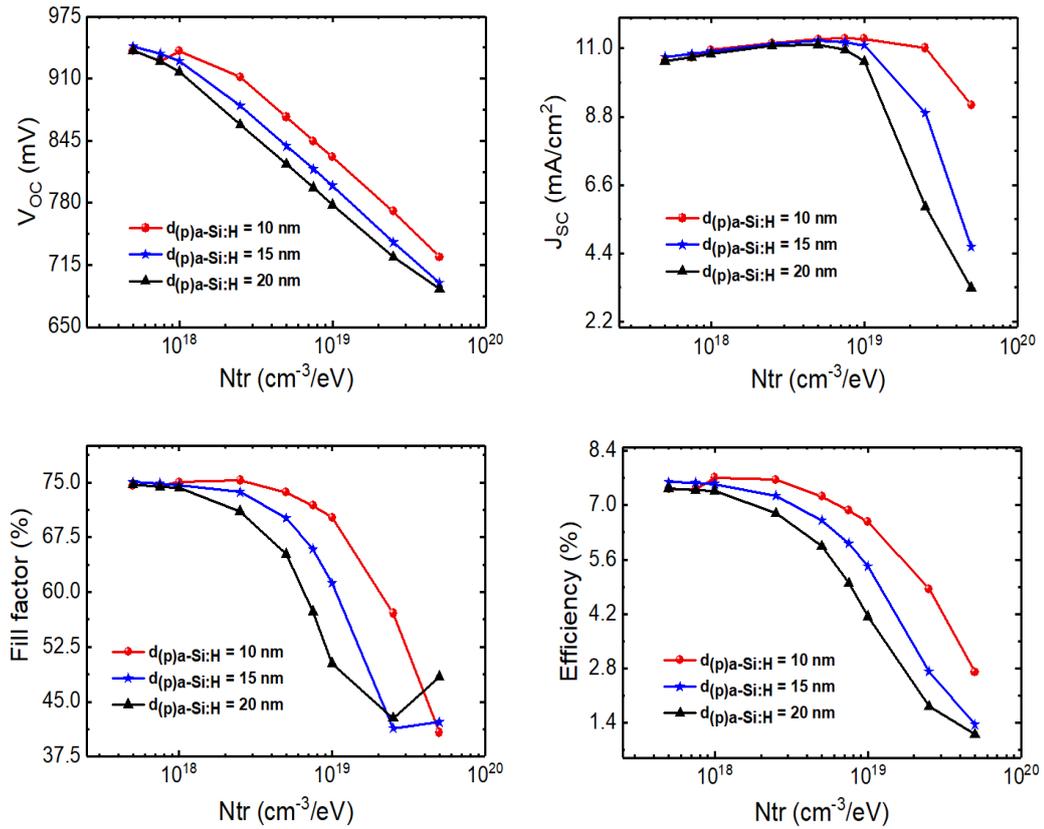
menyatakan rapat arus maksimum, P_m menyatakan daya maksimum, FF menyatakan fill factor, dan E_{ff} menyatakan efisiensi konversi..

3. Hasil dan Pembahasan

Untuk mempelajari pengaruh rapat cacat DB pada lapisan (p)a-Si:H (N_{tr}) terhadap kinerja sel surya struktur p-i-n berbasis a-Si:H, maka dilakukan tinjauan pada daerah antar-muka ITO/(p)a-Si:H dan (p)a-Si:H/(i)a-Si:H dengan melakukan perbandingan terhadap kurva karakteristik J-V (dalam kondisi gelap dan disinari), diagram pita energi, profil medan listrik, profil konsentrasi pembawa muatan, dan efisiensi kuantum (QE) terhadap sel surya p-i-n yang dioperasikan pada rapat cacat DB berbeda. Selama simulasi, fungsi kerja pada kontak depan ITO/(p)a-Si:H (WF_{ITO}) dipertahankan pada nilai 5.4 eV ($\sim\phi_{b0} = 1.60$ eV), konsentrasi doping pada lapisan (p)a-Si:H dan (n)a-Si:H dipertahankan pada nilai $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ dan $1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, celah pita energi untuk ketiga lapisan a-Si:H masing-masing 1.81 eV, 1.92 eV, dan 1.88 eV. Sementara itu, nilai rapat cacat DB pada lapisan (p)a-Si:H divariasikan antara 5.0×10^{17} - $5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ yang dioperasikan pada ketebalan 10, 15 dan 20 nm, sedangkan ketebalan lapisan (i)a-Si:H dan (n)a-Si:H dipertahankan pada 250 dan 20 nm.

Gambar. 3(a)-(d) menunjukkan pengaruh N_{tr} sebagai rapat cacat puncak Gaussian yang dinyatakan sebagai donor-like ($N_{tr}^{+/0}$) = akseptor-like ($N_{tr}^{0/-}$) = N_{tr} terhadap keluaran listrik sel surya p-i-n a-Si:H yang dioperasikan pada ketebalan lapisan (p)a-Si:H berbeda. Peningkatan nilai N_{tr} pada lapisan emitter (p) berkaitan dengan peningkatan keadaan cacat yang berpengaruh pada peningkatan proses rekombinasi pada lapisan (p)a-Si:H, pembentukan *band-offset* pada pita valensi (ΔE_V) sebagai perangkap pembawa muatan (hole), dan terbentuknya kontak Schottky pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H. Gambar. 3(a), 3(c) dan 3(d) menunjukkan kecenderungan nilai V_{OC} , FF dan E_{ff} pada ketiga ketebalan (p)a-Si:H berbeda cenderung bernilai konstan dengan meningkatnya rapat cacat $N_{tr} = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ berkaitan dengan konsentrasi hole pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H dan (p)a-Si:H/(i)a-Si:H dapat dipertahankan tinggi jika nilai $N_{tr, \text{maksimum}} = 2 \times N_A$ (konsentrasi doping (p)a-Si:H) tetap dapat dipenuhi [22].

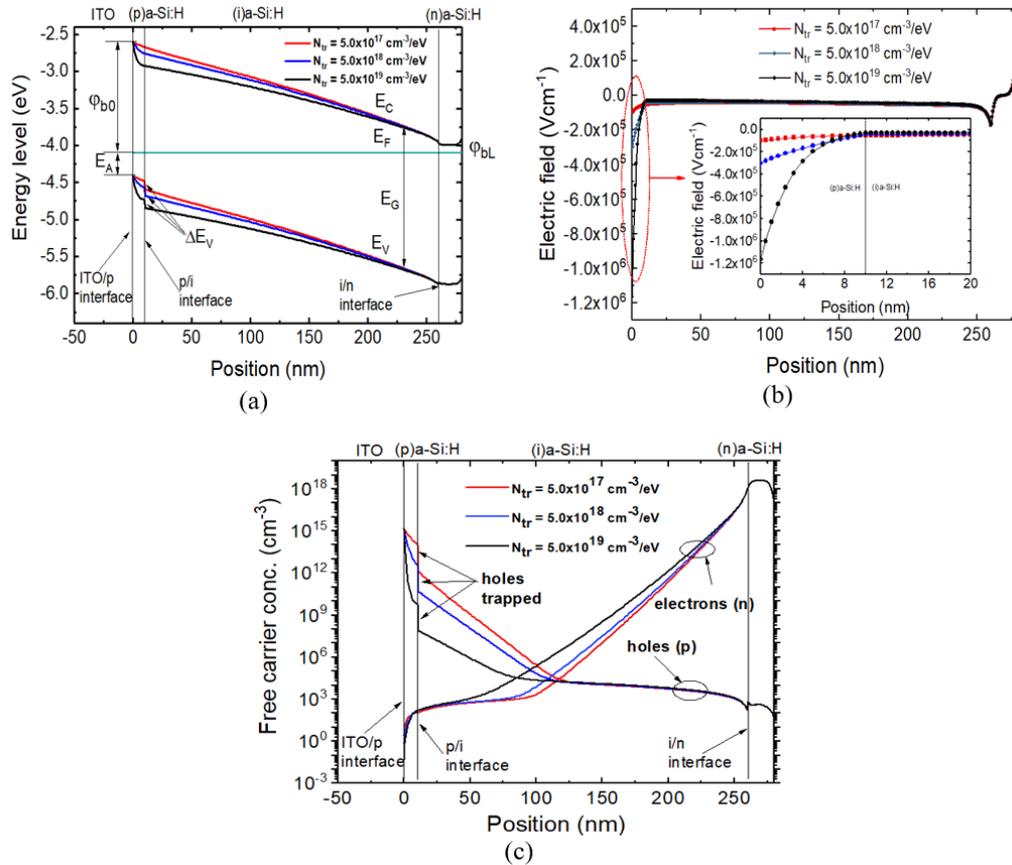
Selanjutnya, nilai V_{OC} , FF dan E_{FF} mengalami penurunan secara drastis dengan meningkatnya nilai N_{tr} yang berkaitan dengan peningkatan rekombinasi yang menyebabkan penurunan nilai *built-in potential* (V_{bi}) yang berpengaruh dengan penurunan nilai V_{OC} dan FF, secara signifikan merujuk pada penurunan nilai E_{ff} . Hal berbeda dapat diamati untuk J_{SC} , seperti ditunjukkan pada Gambar 3(b), dimana nilainya cenderung secara perlahan meningkat dengan meningkatnya N_{tr} pada ketebalan yang berbeda yang menunjukkan untuk $N_{tr} \leq 1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ kurang sensitif terhadap perubahan cacat lapisan (p)a-Si:H, dimana menunjukkan pada jangkauan N_{tr} , absorpsi cahaya dapat dipertahankan untuk bisa sampai pada lapisan intrinsik (i)a-Si:H untuk menghasilkan pasangan elektron-hole lebih banyak, tetapi untuk $N_{tr} > 1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ nilai J_{SC} secara drastis mengalami penurunan akibat meningkatnya absorpsi parasitik pada lapisan (p)a-Si:H yang menyebabkan berkurangnya foton yang masuk ke lapisan intrinsik mengalami penurunan.



Gambar 3. Pengaruh rapat cacat pada lapisan (p)a-Si:H (N_{tr}) terhadap kinerja sel surya p-i-n a-Si:H yang dinyatakan dengan (a) tegangan terbuka (V_{OC}); (b) arus hubung pendek (J_{SC}); (c) fill factor (FF) dan (d) efisiensi konversi (E_{ff})

Gambar. 4(a)-(b) menunjukkan diagram pita energi dan profil medan listrik pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H dan (p)a-Si:H/(i)a-Si:H sel surya p-i-n a-Si:H dalam kondisi keseimbangan termal yang dioperasikan pada tiga nilai N_{tr} , yaitu 5.0×10^{17} , 5.0×10^{18} , dan 5.0×10^{19} cm^{-3}/eV dengan nilai $WF_{ITO} = 5.4$ eV (band-bending kecil dipermukaan) yang menunjukkan bahwa kontak depan pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H hampir menyerupai kontak ohmik (schottky barrier diabaikan). Gambar 4(a) menunjukkan peningkatan N_{tr} menyebabkan meningkatnya *band-offset* (ΔE_V) dan menunjukkan pita valensi menurun menjauhi tingkat energi Fermi, hal ini berpengaruh pada penurunan *built-in potential* yang berimplikasi pada penurunan V_{OC} dan FF, sehingga E_{ff} mengalami penurunan secara simultan. Peningkatan N_{tr} menyebabkan terjadinya peningkatan rekombinasi akibat konsentrasi pembawa muatan mayoritas (hole) yang terperangkap pada antar-muka (p)a-Si:H/(i)a-Si:H beranihilisasi dengan elektron yang berdifusi dari lapisan (n)a-Si:H melalui lapisan intrinsik. Hal ini dikonfirmasi dengan profil medan listrik (Gambar. 4(b)), dimana peningkatan nilai N_{tr} menyebabkan terjadinya peningkatan ketidak-seimbangan pembawa muatan pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H dan antar-muka (p)a-Si:H/(i)a-Si:H (Gambar. 4(c)) yang menyebabkan peningkatan *built-in* medan listrik bernilai (-) karena berarah dari (n)a-Si:H menuju (p)a-Si:H. Peningkatan profil medan listrik pada daerah antar-muka ITO/(p)a-Si:H akibat peningkatan konsentrasi N_{tr} sepenuhnya tidak menyebabkan hole bergerak menuju permukaan melalui lapisan

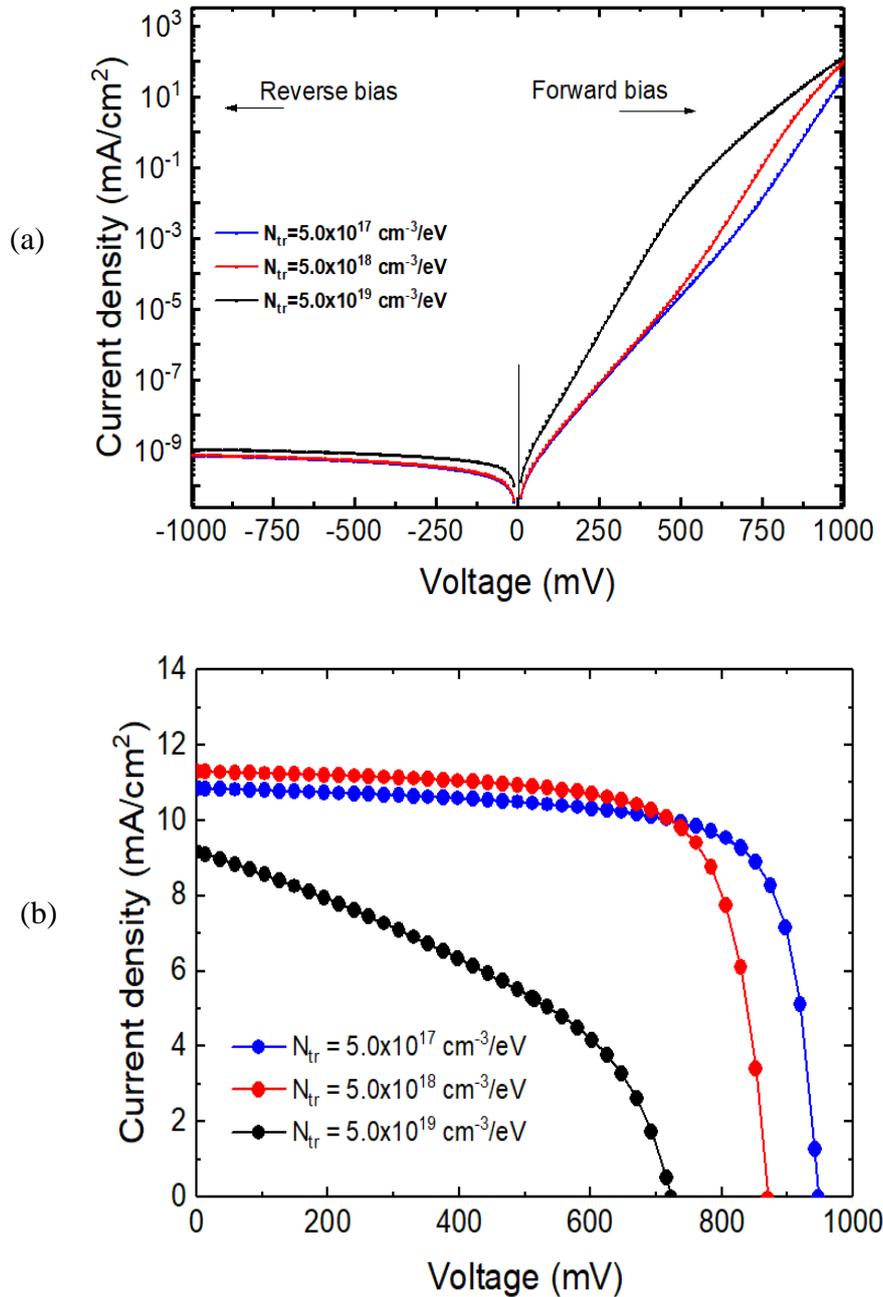
(p)a-Si:H karena jumlah hole yang terperangkap pada *band-offset* pita valensi mengalami proses rekombinasi dengan elektron. Hal ini yang menyebabkan peningkatan rapat cacat DB pada lapisan (p)a-Si:H menurunkan *built-in potential* yang berimbas pada penurunan nilai V_{OC} dan FF.



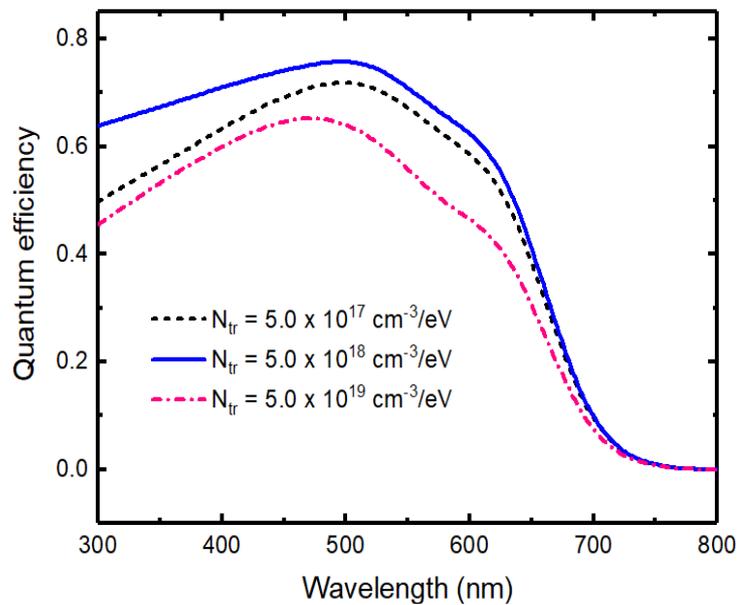
Gambar 4. Menunjukkan (a) diagram pita energi dalam kondisi kesetimbangan termal; (b) profil medan listrik; (c) profil pembawa muatan pada antara-muka ITO/(p)a-Si:H dan (p)a-Si:H/(i)a-Si:H sel surya p-i-n a-Si:H yang dioperasikan pada $N_{tr} = 5.0 \times 10^{17}$, 5.0×10^{18} , $5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$

Gambar 5(a) menunjukkan kurva karakteristik J-V dalam kondisi gelap pada sel surya p-i-n yang dioperasikan pada rapat cacat N_{tr} lapisan (p)a-Si:H berbeda. Rapat arus gelap (J_0) pada sel surya p-i-n berbasis a-Si:H dikendalikan sepenuhnya oleh lima mekanisme, yaitu injeksi hole dan elektron pada kontak depan dan belakang, difusi dan *drift* elektron dan hole pada lapisan "bulk", dan rekombinasi pasangan elektron-hole pada daerah aktif (intrinsik)[18]. Pada bias mundur (-1000-0 mV), peningkatan nilai N_{tr} menyebabkan terjadinya peningkatan rekombinasi akibat konsentrasi pembawa muatan mayoritas (hole) yang terperangkap pada antar-muka (p)a-Si:H/(i)a-Si:H beranihilisasi dengan elektron yang berdifusi dari lapisan (n)a-Si:H melalui lapisan intrinsik. Pada saat $V = -1000 \text{ mV}$ (bias mundur) nilai rapat arus jenuh mundur (*reverse saturation current density*), J_0 , untuk ketiga nilai N_{tr} secara signifikan tidak berpengaruh pada J_0 , yaitu $6.93 \times 10^{-10} \text{ mA/cm}^2$ ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$), $7.24 \times 10^{-10} \text{ mA/cm}^2$ ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$) dan $1.05 \times 10^{-9} \text{ mA/cm}^2$ ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$).

mA/cm^3 ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$). Hal ini berbeda untuk bias maju (*forward bias*), tidak teramati semakin besar nilai N_{tr} pada jangkauan tegangan aplikasi, nilainya semakin besar dan teramati bahwa daerah rapat arus jenuh tidak terjadi, hal ini disebabkan penggunaan $W_{ITO} = 5.4 \text{ eV}$ menunjukkan bahwa fungsi kerja kontak depan netral (tanpa band-bending) dengan tanpa kehadiran penghalang Schottky (*Schottky barrier*) pada antar-muka ITO/(p)a-Si:H ($W_{ITO}^n = 5.4 \text{ eV}$).



Gambar 5. Kurva karakteristik J-V sel surya p-i-n a-Si:H dalam kondisi (a) gelap; (b) disinari



Gambar 6. Efisiensi kuantum sel surya p-i-n a-Si:H pada nilai $N_{tr} = 5.0 \times 10^{17}$, 5.0×10^{18} , dan $5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ yang diuji pada jangkauan spektrum cahaya antara 300 – 800 nm

Sementara itu, pada kondisi disinari kurva karakteristik J-V menunjukkan hasil yang cukup informatif terhadap pengaruh rapat cacat DB pada lapisan (p)a-Si:H, seperti ditunjukkan pada Gambar. 5(b). Peningkatan N_{tr} menunjukkan kualitas lapisan (p)a-Si:H semakin kecil, sehingga secara langsung berpengaruh pada kinerja sel surya p-i-n a-Si:H yang dioperasikan pada doping moderat lapisan (p)a-Si:H (N_A) $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, ketebalan 10 nm dan N_{tr} sekitar $5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ diperoleh efisiensi sangat rendah sekitar 2.75% ($V_{OC} = 723.1 \text{ mV}$, $J_{SC} = 9.17 \text{ mA}/\text{cm}^2$; $FF = 40.78\%$). Selain itu, untuk N_{tr} dalam jangkauan $N_{tr, \text{maksimum}} = 2 \times N_A$ yang dioperasikan pada sel surya p-i-n a-Si:H memberikan hasil yang cukup signifikan. Pada saat rapat cacat N_{tr} rendah ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$) diperoleh efisiensi sekitar 7.68% ($V_{OC} = 947.2 \text{ mV}$, $J_{SC} = 10.84 \text{ mA}/\text{cm}^2$; $FF = 74.82\%$), sedangkan pada N_{tr} moderat ($N_{tr} = 5.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$) diperoleh efisiensi 7.24% ($V_{OC} = 870 \text{ mV}$, $J_{SC} = 11.29 \text{ mA}/\text{cm}^2$; $FF = 73.73\%$). Pada jangkauan rapat cacat DB $N_{tr} \leq 5.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$, sel surya p-i-n a-Si:H teramati kurang sensitif terhadap peningkatan N_{tr} dimana dalam skala teknis dapat dipenuhi dengan meningkatkan kualitas lapisan (p)a-Si:H pada proses fabrikasi, misalnya laju deposisi, temperatur substrat, tekanan, dan sebagainya.

Selanjutnya hasil ini dikonfirmasi dengan efisiensi kuantum (QE) yang mengindikasikan kemampuan sel surya p-i-n a-Si:H untuk menyerap cahaya dan menghasilkan pasangan elektron-hole sebanyak mungkin yang tergantung pada kualitas material a-Si:H yang digunakan. Gambar. 6 menunjukkan efisiensi kuantum sel surya p-i-n a-Si:H yang dioperasikan pada jangkauan panjang gelombang cahaya antara 300-800 nm (daerah biru-merah). Hasil simulasi menggunakan software AFORS-HET menunjukkan bahwa sel surya p-i-n yang dioperasikan pada nilai N_{tr} memiliki respon yang baik pada jangkauan panjang gelombang 300-520 nm (daerah biru) yang berimplikasi pada peningkatan nilai J_{SC} .

Hasil ini dikonfirmasi dengan keterkaitan antara nilai QE terhadap nilai J_{sc} yang dinyatakan sebagai [17]:

$$J_{sc} = \int_{300 \text{ nm}}^{800 \text{ nm}} \left[\frac{q\lambda}{hc} \phi_{AM1.5}(\lambda) EQE(\lambda) \right] d\lambda \quad (8)$$

$$EQE(\lambda) = \frac{J_{sc}(\lambda)}{q\Phi(\lambda)} = \frac{J_{sc}}{q} \left(\frac{hv}{P_{opt}} \right) \quad (9)$$

4. Kesimpulan

Sel surya p-i-n berbasis a-Si:H telah berhasil disimulasi menggunakan software AFORS-HET dengan kajian utama terkait pengaruh rapat cacat DB yang divariasikan dengan ketebalan lapisan (p)a-Si:H terhadap kinerja sel surya yang dianalisis menggunakan diagram pita energi, profil medan listrik, profil konsentrasi pembawa muatan, kurva karakteristik J-V dan Kurva QE. Hasil simulasi menunjukkan kinerja sel surya yang dioperasikan pada $N_{tr} \leq 5.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$ (nilai kritis) secara signifikan tidak terpengaruh dengan peningkatan N_{tr} , tetapi dengan meningkatnya nilai N_{tr} melebihi nilai kritisnya terjadi penurunan kinerja sel surya yang dinyatakan dengan besaran parameter yang diekstrak dari kurva J-V. Nilai optimum pada pengoperasian ini sebagai bentuk rekomendasi menggunakan N_{tr} moderat ($5.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}/\text{eV}$) yang sesuai dengan hasil yang diperoleh dari eksperimen, dimana diperoleh efisiensi 7.24% ($V_{oc} = 870 \text{ mV}$, $J_{sc} = 11.29 \text{ mA}/\text{cm}^2$; $FF = 73.73\%$) pada saat dioperasikan pada konsentrasi doping lapisan (p)a-Si:H (N_A) $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ dan ketebalan 10 nm. Kualitas lapisan yang digambarkan dengan rapat cacat DB pada sel surya p-i-n dapat diminimalisir dengan mempertimbangkan parameter utama yang berpengaruh pada proses fabrikas sel surya, diantaranya: laju deposisi, temperatur substrat, tekanan, daya rf, waktu deposisi dan sebagainya.

Ucapan Terima Kasih

Dalam kesempatan ini, penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB) atas penggunaan perangkat AFORS-HET (*open source*)

Daftar Pustaka

1. Qarony W, Hossain MI, Hossain MK, Uddin MJ, Haque A, Saad AR, et al. Efficient amorphous silicon solar cells: characterization, optimization, and optical loss analysis. *Results in Physics*. [Online] 2017;7: 4287–4293.
2. Barbato M, Artegiani E, Bertocello M, Meneghini M, Trivellin N, Mantoan E, et al. CdTe solar cells: technology, operation and reliability. *Journal of Physics D: Applied Physics*. [Online] IOP Publishing; 2021;54(33): 333002.
3. Kokkonen M, Talebi P, Zhou J, Asgari S, Soomro SA, Elsehrawy F, et al. Advanced research trends in dye-sensitized solar cells. *J. Mater. Chem. A*. [Online] The Royal Society of Chemistry; 2021;9(17): 10527–10545.

4. Kumar NS, Naidu KCB. A review on perovskite solar cells (PSCs), materials and applications. *Journal of Materiomics*. [Online] 2021;7(5): 940–956.
5. Sharma M, Panigrahi J, Komarala VK. Nanocrystalline silicon thin film growth and application for silicon heterojunction solar cells: a short review. *Nanoscale Adv.* [Online] RSC; 2021;3(12): 3373–3383.
6. Stuckelberger M, Biron R, Wyrsh N, Haug F-J, Ballif C. Review: Progress in solar cells from hydrogenated amorphous silicon. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. [Online] 2017;76: 1497–1523.
7. Bouhdjar AF, Ayat L, Meftah A, Sengouga N, Meftah A. Computer modelling and analysis of the photodegradation effect in a-Si:H p–i–n solar cell. *Journal of Semiconductors*. [Online] IOP Publishing; 2015;36(1): 014002.
8. Lee TD, Ebong AU. A review of thin film solar cell technologies and challenges. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. [Online] 2017;70: 1286–1297.
9. Cahyono Y, Yahya E, Zainuri M, Pratapa S, Darminto. Quantum Confinement in an Intrinsic a-Si:H Thin Film Deposited on Soda Lime Glass Substrate Using PECVD. *Transactions on Electrical and Electronic Materials*. [Online] 2018;19(1): 69–73.
10. Son WH, Lee TY, Choi SY, Jung D. Effect of phosphorus doping on the performance of pin-type a-Si:H thin-film solar cells. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*. [Online] Taylor & Francis; 2018;662(1): 25–31.
11. Prayogi S, Cahyono Y, Iqballudin I, Stchakovsky M, Darminto D. The effect of adding an active layer to the structure of a-Si: H solar cells on the efficiency using RF-PECVD. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*. [Online] 2021;32(6): 7609–7618.
12. Hamdani D, Cahyono Y, Yudoyono G, Darminto. Band Gap Optimization of Thin Film a-Si:H Bifacial Solar Cells (BFSCs) Using AFORS-HET. *Functional Properties of Modern Materials II*. [Online] Trans Tech Publications Ltd; 2019. p. 409–414.
13. Sharma M, Chaudhary D, Dwivedi N, Sudhakar S, Kumar S. Simulating the Role of TCO Materials, their Surface Texturing and Band Gap of Amorphous Silicon Layers on the Efficiency of Amorphous Silicon Thin Film Solar Cells. *Silicon*. [Online] 2017;9(1): 59–68. Available from: doi:10.1007/s12633-015-9331-6.
14. Singh S, Kumar S, Dwivedi N. Band gap optimization of p–i–n layers of a-Si:H by computer aided simulation for development of efficient solar cell. *Solar Energy*. [Online] 2012;86(5): 1470–1476.
15. Benigno I, Darminto D. Effect of Intrinsic Layer Energy Gap and Thicknesses Optimization on the Efficiency of p-i-n Amorphous Silicon Solar Cell. 2017.
16. Stangl R, Leendertz C, Haschke J. Numerical Simulation of Solar Cells and Solar Cell Characterization Methods: the Open-Source on Demand Program AFORS-HET. *Solar Energy*. [Online] IntechOpen; 2010; Available from: doi:10.5772/8073.
17. Hamdani D, Cahyono Y, Yudoyono G, Darminto D. Performances analysis of heterojunction solar cells through integration of hydrogenated nanocrystalline silicon bilayer by using numerical study. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*. [Online] Taylor & Francis; 2021: 1–20. Available from: doi:10.1080/15421406.2021.1922226.

18. Belfar A. Simulation study of the a-Si:H/nc-Si:H solar cells performance sensitivity to the TCO work function, the band gap and the thickness of i-a-Si:H absorber layer. *Solar Energy*. [Online] 2015;114: 408–417.
19. Zhang L, Das UK, Shu Z, Liu H, Birkmire RW, Hegedus SS. Experimental and simulated analysis of p a-Si:H defects on silicon heterojunction solar cells: trade-offs between VOC and FF. 2015 IEEE 42nd Photovoltaic Specialist Conference (PVSC). [Online] 2015. p. 1–5. A.
20. Crupi I, Ruggeri FS, Grasso A, Ruffino F, Catania G, Piro AM, et al. Influence of the electro-optical properties of an α -Si:H single layer on the performances of a pin solar cell. *Thin Solid Films*. [Online] 2012;520(11): 4036–4040.
21. Zhang L, Das UK, Shu Z, Liu H, Birkmire RW, Hegedus SS. Experimental and simulated analysis of p a-Si:H defects on silicon heterojunction solar cells: trade-offs between VOC and FF. 2015 IEEE 42nd Photovoltaic Specialist Conference (PVSC). [Online] 2015. p. 1–5. A.
22. Ghannam M, Shehadah G, Abdulaheem Y, Poortmans J. On the possible role of the interfacial inversion layer in the improvement of the performance of hydrogenated amorphous silicon/crystalline silicon heterojunction solar cells [HIT]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*. [Online] 2015;132: 320–328.

SINTESIS KRISTAL TUNGGAL PEROVSKITE MAPbBr₃ MENGUNAKAN METODE *INVERSE TEMPERATURE CRYSTALLIZATION* UNTUK APLIKASI FOTODETEKTOR SINAR-X

ROSSYAILA MATSNA MUSLIMAWATI¹, AYI BAHTIAR^{2*}

¹ Program Studi S2 Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat

² Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat

*email : ayi.bahtiar@phys.unpad.ac.id

Abstrak. Metilamonium timbal tri-bromid (MAPbBr₃) merupakan material perovskite logam halida yang umum untuk digunakan untuk aplikasi fotodetektor sinar-X. Namun, jika perovskite berstruktur polikristal maka resistivitasnya tinggi. Oleh sebab itu, perovskite MAPbBr₃ perlu dibuat dalam bentuk kristal tunggal khususnya untuk aplikasi pada fotodetektor sinar-X, untuk menghasilkan nilai mobilitas (μ) dan *lifetime* (τ) muatan pembawa yang tinggi. Masalah lain dalam pembuatan kristal tunggal perovskite MAPbBr₃ adalah ukuran dimensi kristal yang kecil, yaitu kurang dari 1 cm², sehingga tidak dapat digunakan untuk aplikasi fotodetektor dalam konfigurasi *flat-panel*. Pada penelitian ini, dilakukan sintesis kristal perovskite MAPbBr₃ menggunakan metode *Inverse Temperature Crystallization* (ITC). Prekursor larutan MAPbBr₃ dibuat dengan variasi rasio molar MABr:PbBr₂ dan volume larutan prekursor. Pada metode ITC, laju kenaikan suhu divariasikan untuk mengontrol laju penumbuhan kristal. Hasil penelitian menunjukkan bahwa ukuran atau dimensi kristal yang disintesis dengan metode ITC ditentukan oleh laju kenaikan suhu. Semakin lambat laju kenaikan suhu, semakin besar ukuran kristal yang dihasilkan. Ukuran kristal MAPbBr₃ terbesar yang telah berhasil dibuat dengan metode ITC adalah 8 mm × 7 mm yang dibuat dengan rasio MABr:PbBr₂ (1,25:1) dengan laju kenaikan suhu 2°C/8 jam untuk volume larutan prekursor 3 mL. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa kristal perovskite MAPbBr₃ berbentuk kubik dengan konstanta kisi 5,99 Å. Puncak-puncak difraksi bidang kristal yang dihasilkan adalah (100), (200), (300) dan (400), yang menunjukkan bahwa kristal MAPbBr₃ berbentuk kristal tunggal, dengan orientasi bidang kristal dalam sumbu-x.

Kata kunci: Perovskite, MAPbBr₃, metode ITC, struktur kristal, kristal tunggal

Abstract. Methylammonium lead tri-bromide (MAPbBr₃) is metal halide perovskite material that commonly used for X-ray photodetector application. However, polycrystalline crystal structure of this material causes high resistivity. Therefore, the perovskite metal halide material must be formed in a single crystal to produce low crystal defect density to increase the value of the charge carriers mobility (μ) and charge carriers lifetime (τ). Other problem in producing MAPbBr₃ crystals is the low size of the single crystals less than 1 cm², which is not suitable for flat-panel configuration of photodetector. In this research, MAPbBr₃ perovskite crystals were synthesized using Inverse Temperature Crystallization (ITC) method. The precursors for the MAPbBr₃ solutions were prepared by varying the molar ratio of MABr: PbBr₂ and the volume of the precursor solutions. In the ITC method, the rate of temperature increment was varied to control the crystal growth rate. The results showed that the size or dimension of the crystals was determined by the raising rate of temperature. The longer the temperature increment rate, the larger the crystal size was produced. The largest crystal size of MAPbBr₃ that was

successfully prepared by the ITC method was 8 mm × 7 mm, made with the MABr: PbBr₂ (1.25:1) ratio with a temperature increasing rate of 2 °C/8 hours for 3 mL precursor solution. The XRD characterization results showed that the perovskite MAPbBr₃ has cubic crystal structure with a lattice constant 5.99 Å. The diffraction peaks of the results crystal plane are (100), (200), (300) and (400) indicating a single crystal of MAPbBr₃ is formed with crystal plane oriented in x-axis direction.

Keywords: Perovskite, MAPbBr₃, ITC method, crystal structure, single crystal

1. Pendahuluan

Fotodetektor energi tinggi seperti detektor sinar-X merupakan aplikasi yang sangat penting dalam bidang diagnostik medis, pengujian peralatan/komponen industri yang tidak merusak (*non-destructive testing*), fotodetektor neutron dan sinar-gamma pada pembangkit tenaga nuklir, sehingga perovskite menjadikan aspek riset yang menarik [1]. Dalam detektor sinar-X berbasis material semikonduktor, sensitivitas dan efisiensi deteksi yang tinggi merupakan parameter terpenting untuk mengurangi dosis sinar-X yang diterima pasien dan pekerja selama pengukuran dan pengujian. Oleh karena itu, peningkatan efisiensi dari sensitivitas detektor sinar-X sangat penting dalam mengurangi risiko kanker dari pasien dan pekerja sekaligus untuk meningkatkan resolusi citra/*image* yang diperoleh.

Saat ini, detektor sinar-X berbasis semikonduktor yang banyak digunakan berbahan Silikon (Si), Selenium amorf (α -Se), Timbal Iodida (PbI₂), Merkuri-Iodida (HgI₂), Kadmium-Telurida (CdTe), dan Kadmium-Seng-Telurida (CdZnTe) [2]. Fotodetektor sinar-X berbahan silikon kristal tunggal walaupun memiliki perkalian mobilitas-*lifetime* ($\mu\tau$), namun memiliki kendala sensitivitas yang rendah, karena koefisien absorpsi yang kecil (bilangan atom yang kecil). Sedangkan komersialisasi dan penggunaan detektor dari material α -Se sangat terbatas, karena absorpsi pada energi tinggi dari sinar-X sangat rendah yaitu sekitar 50 keV. Sedangkan detektor berbahan PbI₂ dan HgI₂ memiliki masalah dengan stabilitas yang rendah terhadap lingkungan. Material CdTe dan CdZnTe memiliki prospek yang menjanjikan untuk aplikasi detektor sinar-X, namun karena mahal dan pemrosesan yang kompleks dan rumit, membatasi penggunaan material ini untuk aplikasi detektor sinar-X [2].

Dalam satu dekade terakhir, material perovskite logam-halida yang memiliki struktur kristal ABX₃ (A = CH₃CH₃ atau MA, NH₂CH=NH₂ atau FA dan Cs ; B = Pb, Bi, dan Sn; serta X = I, Br, Cl) telah menarik banyak perhatian peneliti sebagai material pada piranti optoelektronik, seperti sel-surya, LED, Laser dan fotodetektor, karena memiliki sifat-sifat yang unggul, seperti koefisien absorpsi yang tinggi, waktu paruh rekombinasi muatan yang tinggi, panjang difusi muatan yang tinggi dan mobilitas muatan yang tinggi serta dapat disintesis dengan metode sederhana dan murah [1,2].

Material perovskite dibuat dalam bentuk film tipis dan kristal tunggal untuk berbagai aplikasi piranti optoelektronik seperti sel surya, LED dan laser menggunakan berbagai teknik pembuatan berbasis larutan yang sederhana, seperti *spin coating* [3] dan *doctor blading* [4] dan teknik evaporasi vakum [5]. Melalui teknik tersebut mampu dihasilkan film perovskite polikristal dengan ukuran bulir dalam orde ratusan nanometer sampai beberapa mikrometer [6-8]. Jumlah bulir dan bidang batas bulir (*grain boundaries*) yang banyak dalam perovskite polikristal menurunkan sifat optoelektronik dan stabilitas material tersebut. Sebaliknya, kristal tunggal yang bebas dari batas-batas bulir menunjukkan densitas cacat yang rendah, sifat optoelektronik dan stabilitas yang lebih baik dari pada film perovskite

polikristal [9]. Simulasi yang telah dilakukan oleh Wei et al, menunjukkan bahwa diperlukan ketebalan 1 mm untuk MAPbI₃, 2 mm untuk MAPbBr₃, sedangkan untuk Silikon diperlukan ketebalan 72 mm agar bisa menyetop 98% sinar-X dengan energi 50 keV [2].

Perovskite metil-amonium timbal halida MAPbX₃ (X = Br dan I) banyak diaplikasikan sebagai fotodetektor energi tinggi, sinar-X dan sinar- γ [12] dan MAPbCl₃ sebagai fotodetektor sinar-UV [10]. Untuk menghasilkan fotodetektor sinar-X yang ideal, material perovskite harus memiliki koefisien absorpsi yang tinggi dan energi gap yang kecil. Perovskite MAPbI₃ memiliki energi gap 1,53 eV, sedangkan MAPbBr₃ 2,24 eV, sehingga MAPbI₃ lebih sesuai untuk fotodetektor sinar-X [11]. Namun stabilitas MAPbI₃ terhadap lingkungan lebih rendah dibandingkan MAPbBr₃, sehingga MAPbBr₃ dipilih untuk material fotodetektor sinar-X. Disamping itu, MAPbBr₃ memiliki struktur kubik, sehingga secara praktis lebih diinginkan untuk pembuatan fotodetektor, khususnya dalam konfigurasi panel-datar (*flat-panel*). Umumnya MAPbI₃ yang telah berhasil disintesis menghasilkan struktur dodekahedral [12].

Fotodetektor MAPbBr₃ kristal tunggal memiliki sensitivitas empat kali lebih tinggi dibandingkan detektor α -Se [2]. Namun, masalah densitas cacat yang masih menjadi kendala dalam aplikasi detektor sinar-X berbahan perovskite secara luas. Kristal tunggal dengan ukuran besar dengan dimensi lebih dari 1 cm² adalah sangat diperlukan untuk studi fundamental dan aplikasi fotodetektor. Kristal perovskite dengan ukuran beragam dengan ukuran kurang dari 1 cm telah berhasil dibuat dengan menggunakan berbagai jenis sintesis berbasis larutan seperti teknik pendinginan konvensional, kristalisasi bebatuan uap anti-pelarut (*Antisolvent Vapor-Assisted Crystallization, AVC*), *top-seeded growth*, *Inverse Temperature Crystallization (ITC)* dan kristalisasi pelarut *acidolysis* [13,14]. Namun, ukuran yang diperoleh masih relatif kecil yaitu kurang dari setengah inci, sehingga belum memenuhi kebutuhan aplikasi, khususnya untuk kepentingan praktis pembuatan fotodetektor dengan konfigurasi panel-datar (*flat-panel configuration*). Oleh karena itu, perlu dikembangkan metode sintesis sederhana namun dapat dikontrol untuk menghasilkan kristal tunggal perovskite dengan ukuran/dimensi lebih dari 1 x 1 cm (1 cm²). Dalam penelitian ini dilakukan sintesis kristal perovskite MAPbBr₃ menggunakan metode ITC untuk menghasilkan kristal tunggal MAPbBr₃ dengan ukuran 100 mm² atau lebih. Adapun ketebalan kristal tunggal MAPbBr₃ yang diperlukan adalah minimum 2 mm. Metode sintesis ITC digunakan karena memerlukan waktu yang lebih cepat dalam penumbuhan kristal MAPbBr₃ dibandingkan dengan metode AVC. Lau penumbuhan kristal dilakukan dengan mengontrol laju kenaikan suhu dari suhu ruang sampai suhu terjadinya saturasi kristalisasi MAPbBr₃ yaitu 80°C.

2. Metode Penelitian

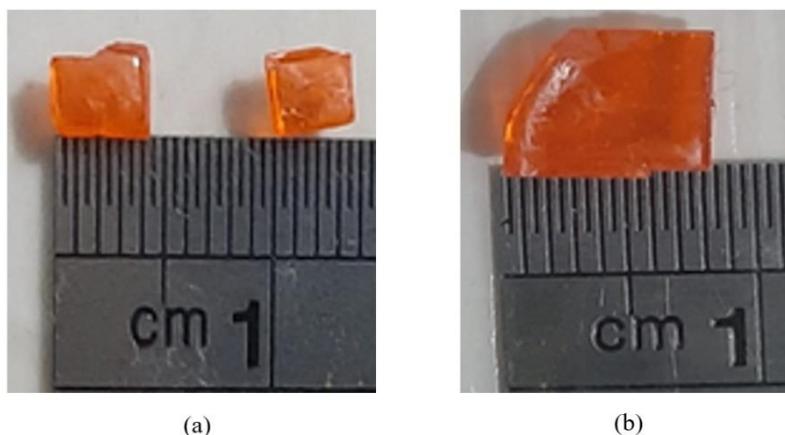
Pada penelitian ini, material yang digunakan adalah *Pure Silicon Oil* (1000 CPS), DMF (*Dimethyl Formamide*), bubuk *Methyl Ammonium Bromide* (CH₃NH₃Br atau MABr >99%), dan bubuk timbal bromide (PbBr₂ 99,999%). Pelarut DMF diperoleh dari Sigma Aldrich, sedangkan MABr dan PbBr₂ dari Lumtech Inc. Taiwan.

Larutan prekursor MAPbBr₃ dibuat dengan menggunakan variasi volume pelarut dan konsentrasi larutan. Pembuatan larutan dilakukan dengan mencampurkan bubuk MABr dan bubuk PbBr₂, yang kemudian dilarutkan ke dalam pelarut DMF.

Pada penelitian ini, dilakukan variasi molar MABr:PbBr_2 yaitu (0,8:1), (1:1) dan (1,25:1), serta variasi DMF yaitu 1 mL, 2 mL dan 3 mL. Selanjutnya larutan diaduk menggunakan *stirrer* di atas *hot-plate* pada suhu ruang dengan kecepatan 300 rpm selama 60 menit sehingga diperoleh larutan yang homogen. Pada salah satu variasi percobaan, larutan difilter dengan filter 0,45 *microsyringe* untuk menghilangkan partikel yang tidak larut. Larutan prekursor yang telah homogen selanjutnya dilakukan penumbuhan kristal dengan metode ITC. Pertama, larutan perovskite yang telah homogen dimasukkan ke dalam botol vial 5 mL, dan kemudian dimasukkan ke dalam gelas kimia 50 mL yang berisi 28 ml cairan *silicon oil*. Selanjutnya diletakkan di atas *mantle heater* dan dilakukan variasi laju kenaikan suhu. Kenaikan suhu yang dilakukan mulai dari suhu 30°C sampai 80°C dengan berbagai variasi kenaikan suhu. Pada saat suhu antara 50°C sampai 76°C, benih kristal mulai terbentuk dan kemudian kristal membesar seiring dinaikannya suhu dan lama waktunya. Ukuran kristal yang dihasilkan bergantung pada laju kenaikan suhu sintesis. Pola XRD pada kristal MAPbBr_3 dihasilkan melalui pengukuran XRD yang dilakukan menggunakan *X-ray Diffraction Bruker D8 Advance 3 kW* dengan detektor *LynxEye XE-T* dan sumber radiasi $\text{Cu-K}\alpha$ dengan panjang gelombang 1,54 Å.

3. Hasil dan Pembahasan

Ukuran kristal perovskite MAPbBr_3 yang telah disintesis dengan metode ITC diukur dalam dimensi panjang \times lebar (mm \times mm). Semua kristal yang dihasilkan memiliki tebal antara 2-3 mm, sehingga memenuhi syarat menyetop 98% sinar-X dengan energi 50 keV [2]. Larutan perovskite MAPbBr_3 dengan variasi konsentrasi molaritas MABr:PbBr_2 dan variasi laju kenaikan suhu menghasilkan kristal-kristal dengan berbagai ukuran. Gambar 1 memperlihatkan contoh foto kristal MAPbBr_3 yang dihasilkan pada laju kenaikan suhu 2°C/jam untuk rasio molar MABr:PbBr_2 1:1 dan 1,25:1. Dimensi kristal yang berbeda tampak untuk kristal yang disintesis dengan perbandingan molar MABr:PbBr_2 dan kenaikan suhu 2°C setiap 4 jam dan setiap 6 jam dari suhu 30°C sampai 70°C. Namun dimensi panjang dan lebarnya sama yaitu 4 mm \times 4 mm untuk sampel yang disintesis dengan kenaikan suhu 2°C/8 jam [Gambar 1(b)].



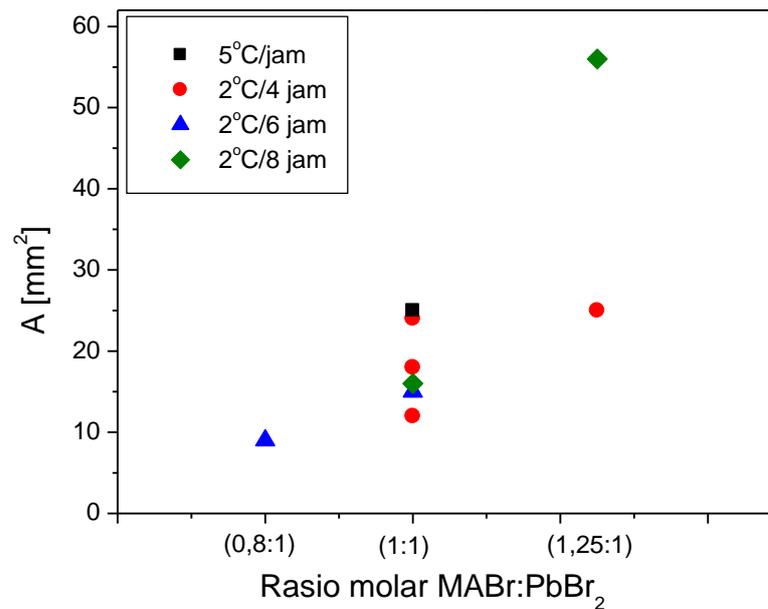
Gambar 1. Foto kristal MAPbBr_3 yang dihasilkan pada laju kenaikan suhu 2 °C/jam untuk rasio molar MABr:PbBr_2 1:1 dan 1,25:1

Dimensi atau ukuran kristal yang disintesis dengan metode ITC secara lengkap disajikan pada Tabel 1. Ukuran kristal semakin besar jika rasio MABr:PbBr₂ meningkat dan volume larutan prekursor perovskite dinaikkan dari 2 mL menjadi 3 mL. Namun bentuk kristal tidak persegi, melainkan memiliki lengkungan di salah satu sisinya, yang mungkin disebabkan oleh sulitnya mengontrol laju kenaikan suhu yang rendah secara presisi. Dalam beberapa kasus, terbentuknya kristal terjadi di pinggir botol bahkan menempel, sehingga pertumbuhan kristal tidak merata. Oleh karena itu, kontrol kenaikan suhu merupakan parameter yang penting dalam metode ITC untuk menghasilkan kristal perovskite MAPbBr₃ dengan bentuk persegi (ukuran dimensi panjang dan lebar yang sama). Kenaikan laju suhu dalam sintesis MAPbBr₃ dengan metode ITC, umumnya dilakukan dengan sangat lambat yaitu 1-2°C/hari untuk menghasilkan kristal perovskite MAPbBr₃ yang persegi dengan ukuran kristal lebih dari 1 cm² [15,16].

Tabel 1. Dimensi ukuran kristal MAPbBr₃ yang disintesis dengan metode ITC

No.	MABr (M)	PbBr ₂ (M)	Volume (ml)	Laju kenaikan Suhu	Ukuran kristal (mm ²)
1	0,8	1	2	2°C/6 jam	3 × 3
2	1	1	1	5°C/6 jam	5 × 5
3	1	1	2	2°C/4 jam	8 × 3
4	1	1	2 (filter)	2°C/4 jam	4 × 3
5	1	1	2	2°C/6 jam	5 × 3
6	1	1	2	2°C/8 jam	4 × 4
7	1	1	3	2°C/4 jam	6 × 3
8	1,25	1	3	2°C/4 jam	6 × 5
9	1,25	1	3	2°C/8 jam	8 × 7

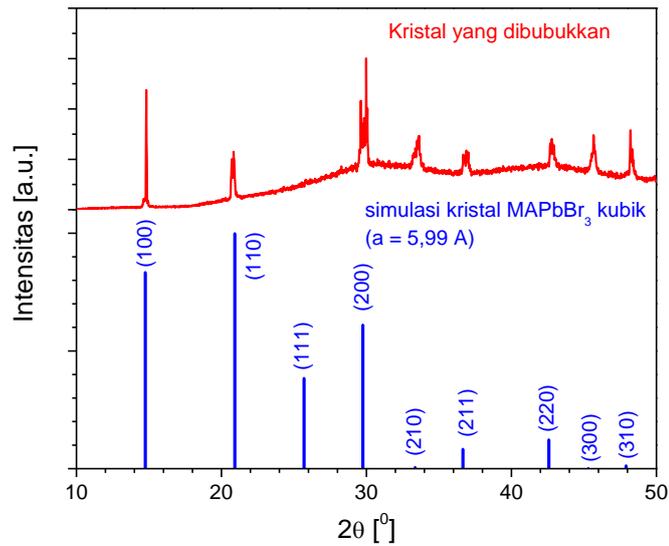
Gambar 2 memperlihatkan hubungan antara luas ($A = \text{panjang} \times \text{lebar}$) dari kristal MAPbBr₃ yang dihasilkan sebagai fungsi dari rasio MABr:PbBr₂ untuk variasi laju kenaikan suhu. Tampak bahwa laju kenaikan suhu sangat menentukan ukuran kristal yang terbentuk. Ukuran kristal dengan dimensi 1 cm² belum berhasil disintesis dengan metode ITC. Diperlukan kenaikan suhu yang lambat dengan kontrol suhu yang presisi untuk menghasilkan kristal dengan dimensi yang besar. Liu et al menggunakan kombinasi metode ITC dengan metode *Low-Temperature Gradient Crystallization* (LTGC) untuk membuat kristal MAPbBr₃ dengan ukuran yang besar. Larutan prekursor didalam botol tertutup dipanaskan secara perlahan yaitu 2°C/hari. Ukuran kristal yang terbentuk memiliki dimensi 44 mm × 49 mm × 17 mm setelah waktu penumbuhan kristal selama 18 hari [15,16].



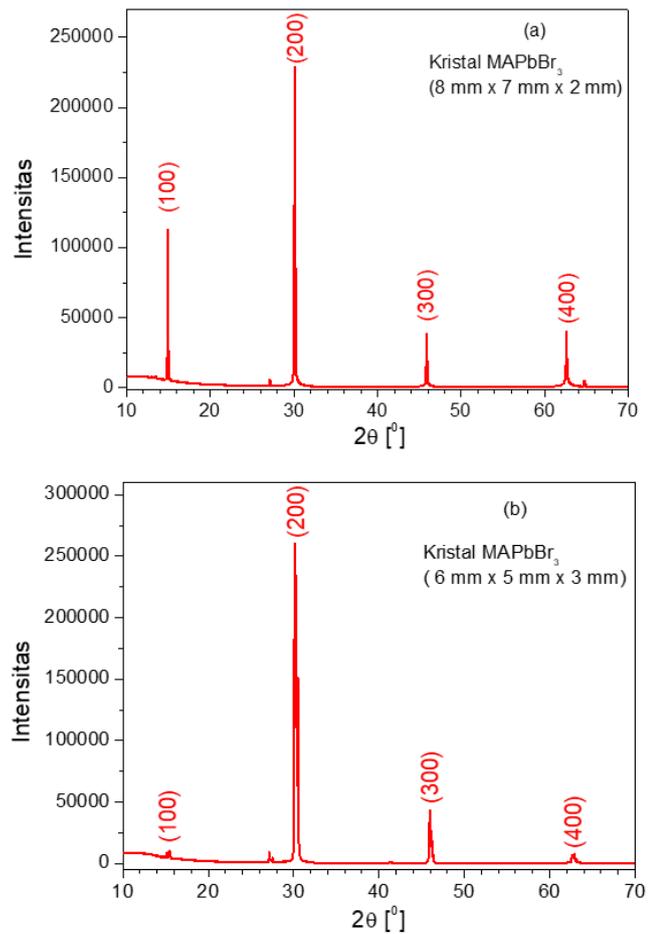
Gambar 2. Hubungan antara luas kristal MAPbBr₃ dengan rasio molar MABr:PbBr₂ untuk variasi laju kenaikan suhu

Gambar 3 memperlihatkan pola XRD dari sampel kristal MAPbBr₃ yang dibubukkan. Pola XRD hasil simulasi untuk kristal MAPbBr₃ berbentuk kubik dengan konstanta kisi 5,99 Å juga diperlihatkan pada Gambar 3. Puncak-puncak difraksi menunjukkan arah bidang-bidang kristal yang terorientasi ke arah sumbu-x, sumbu-xy dan sumbu-xyz. Hal ini karena sampel kristal sebelumnya dibubukkan sehingga sampel berbentuk bubuk. Akibatnya pada proses pengujian XRD, sinar-X akan terhambur ke beberapa arah, yang menghasilkan polikristal. Pola XRD dari sampel memiliki puncak-puncak difraksi pada sudut yang sama dengan hasil simulasi struktur kristal MAPbBr₃ yang berbentuk kubik dengan konstanta kisi 5,99 Å [17]. Hal ini menunjukkan bahwa sampel memiliki struktur kubik dengan konstanta kisi $a = 5,99 \text{ \AA}$. Namun puncak difraksi bidang kristal (111) pada sudut 26,4° pada sampel hasil eksperimen tidak muncul. Hal ini mungkin karena bentuk kristalnya persegi, sehingga kristal cenderung terorientasi dalam arah sumbu-x atau sumbu-y atau bidang x-y.

Pola XRD dari sampel kristal MAPbBr₃ yang memiliki dimensi ukuran yang besar yaitu 8 mm × 7 mm diperlihatkan pada Gambar 4 (a). Pola XRD memperlihatkan puncak-puncak difraksi bidang kristal (100), (200), (300) dan (400). Pola XRD untuk ukuran kristal yang lain menunjukkan puncak-puncak difraksi yang sama, hanya nilai intensitasnya yang berbeda, seperti diperlihatkan pada pola XRD untuk ukuran kristal 6 mm × 4 mm [Gambar 4(b)]. Pola XRD yang dihasilkan tidak bergantung pada ukuran kristal MAPbBr₃ yang dihasilkan. Hasil XRD ini menunjukkan bahwa kristal MAPbBr₃ berbentuk kristal tunggal telah berhasil disintesis dengan metode ITC dengan arah orientasi bidang kristal sejajar sumbu-x.



Gambar 3. Pola XRD kristal perovskite MAPbBr₃ yang disintesis dengan metode ITC yang dibubukkan dan Pola XRD hasil simulasi untuk kristal MAPbBr₃ berbentuk kubik dengan konstanta kisi 5,99 Å



Gambar 4. Pola XRD kristal perovskite MAPbBr₃ yang memiliki ukuran (a). 8 mm x 7 mm, dan (b). 6 mm x 6 mm

4. Kesimpulan

Kristal perovskite MAPbBr₃ telah berhasil dibuat dengan metode *Inverse Temperature Crystallization* (ITC). Penumbuhan kristal perovskite MAPbBr₃ dengan metode ITC dipengaruhi oleh laju kenaikan suhu. Semakin lambat laju kenaikan suhu, semakin besar ukuran kristal MAPbBr₃ yang dihasilkan. Kristal dengan dimensi terbesar yang telah berhasil dibuat memiliki ukuran 8 mm × 7 mm yang diperoleh untuk rasio molar MABr:PbBr₂ (1,25:1) dengan laju kenaikan suhu 2°C/8 jam. Hasil pengujian XRD menunjukkan bahwa kristal perovskite MAPbBr₃ berbentuk kristal tunggal dengan arah orientasi bidang kristal sejajar dengan sumbu-x.

Ucapan Terima Kasih

Penelitian ini didukung oleh Hibah Riset Universitas Padjadjaran (HRU), Riset Kompetensi Dosen Unpad (RKDU), Nomor kontrak 1959/UN6.3.1/PT.00/2021, tanggal 22 April 2021.

Daftar Pustaka

1. H. Zhang, F. Wang, Y. Lu, Q. Sun, Y. Xu, B.-B. Zhang, W. Jie and M. G. Kanatzidis, "High-sensitivity X-ray detectors based on solution-grown caesium lead bromide single crystals", *J. Mater. Chem. C* Vol. 8 (2020), 1248–1256.
2. H. Wei, Y. Fang, P. Mulligan, W. Chuirazzi, H.-H. Fang, C. Wang, B. R. Ecker, Y. Gao, M. A. Loi, L. Cao and J. Huang, "Sensitive X-ray detectors made of methylammonium lead tribromide perovskite single crystals", *Nat. Photon.* Vol. 10 (2016), 333–340.
3. Q. Wang, X. Zeng, Y. Deng, J. Zhao, Z. Chen and J. Huang, "Stabilizing the α -phase of CsPbI₃ perovskite by sulfobetaine zwitterions in one-step spin coating films", *Joule* Vol. 1 (2017), 371–382.
4. Q. Hu, H. Wu, J. Sun, D. Yan, Y. Gao and J. Yang, "Large-area perovskite nanowire arrays fabricated by large-scale roll-to-roll micro-gravure printing and doctor blading", *Nanoscale* Vol. 8 (2016), 5350–5357.
5. C.-W. Chen, H.-W. Kang, S.-Y. Hsiao, P.-F. Yang, K.-M. Chiang and H.-W. Lin, "Efficient and uniform planar-type perovskite solar cells by simple sequential vacuum deposition", *Adv. Mater.* Vol. 26 (2014), 6647–6652.
6. Q. Jiang, Y. Zhao, X. Zhang, X. Yang, Y. Chen, Z. Chu, Q. Ye, X. Li, Z. Yin and J. You, "Surface passivation of perovskite film for efficient solar cells", *Nat. Photon.* Vol. 13 (2019), 460–466.
7. Y. Bai, Y. Lin, L. Ren, X. Shi, E. a Strounina, Y. Deng, Q. Wang, Y. Fang, X. Zheng, Y. Lin, Z.-G. Chen, Y. Du, L. Wang and J. Huang, "Oligomeric silica-wrapped perovskites enable synchronous defect passivation and grain stabilization for efficient and stable perovskite photovoltaics", *ACS Energy Lett.* Vol. 4 (2019), 1231–1240.
8. X. Cheng, S. Yang, B. Cao, X. Tao and Z. Chen, "Single crystal perovskite solar cells: Development and perspectives", *Adv. Funct. Mater.* Vol 30 (2020), 1905021 (20 Halaman).

9. J. Ding, S. Du, T. Zhou, Y. Yuan, X. Cheng, L. Jing, Q. Yao, J. Zhang, Q. He, H. Cui, X. Zhan and H. Sun, "Cesium decreases defect density and enhances optoelectronic properties of mixed $\text{MA}_{1-x}\text{Cs}_x\text{PbBr}_3$ single crystal", *J. Phys. Chem C* Vol. 123 (2019), 14969–14975.
10. G. Maculan, A. D. Sheikh, A. L. Abdelhady, M. I. Saidaminov, M. A. Haque, B. Murali, E. Alarousu, O. F. Mohammed, T. Wu and O. M. Bakr, " $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ single crystals: Inverse temperature crystallization and visible-blind UV-photodetector", *J. Phys. Chem. Lett.* Vol. 6 (2015), 3781–3786.
11. Y. Liu, Z. Yang, D. Cui, X. ren, J. Sun, X. Liu, J. Zhang, Wei, H. fan, F. Yu, C. Zhao and S. Lie, "Two-inch-sized perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ (X = Cl, Br, I) crystals: Growth and characterization", *Adv. Mater.* Vol. 27 (2015), 5176–5183.
12. Y. Su, W. Ma and Y. Yang, "Perovskite semiconductors for direct X-ray detection and imaging", *J. Semicond.* Vol. 41 (2020), 051204 (10 Halaman).
13. S. Arya, P. Mahajan, R. Gupta, R. Srivastava, N. K. Tailor, S. Satapathi, R. R. Sumathi, R. Datt and V. Gupta, "A comprehensive review on synthesis and applications of single crystal perovskite halides", *Prog. Solid State Chem.* Vol. 60 (2020), 100286 (35 Halaman).
14. S. -S. Rong, M. B. faheem and Y.-B. Li, "Perovskite single crystals: Synthesis, properties and applications", *J. Electron. Sci. Technol.* (2021), 100081 (18 Halaman)
15. Y. Liu, Y. Zhang, Z. Yang, J. Fang, Z. Xu, Q. Li, M. Hu, H. Ye, X. Zhang, M. Liu, K. Zhao and S. Liu, "Low-temperature-gradient crystallization for multi-inch high-quality perovskite single crystals for record performance photodetectors", *Mater. Today* Vo. 22 (2018), 67–75.
16. Y.-C. Liu, Y.-X. Zhang, K. Zhao, Z. Yang, J. Feng, X. Zhang, K. Wang, L. Meng, H. Ye, M. Liu and S. Liu, "A 1300 mm² ultrahigh-performance digital imaging assembly using high-quality perovskite single crystals", *Adv. Mater.* Vol. 30 (2018), 1707314 (11 Halaman).
17. R. M. Muslimawati, Setianto, M. Manawan and A. Bahtiar, "Synthesis of single crystal perovskite MAPbBr_3 by using anti-solvent vapor-assisted crystallization method for x-ray photodetector application", *Journal of Physics: Conference Series* (2021), submitted

RENDEMEN DAN KARAKTERISTIK KIMIA FISIK BIODIESEL DARI TRANSESTERIFIKASI MINYAK BIJI KAPUK TEROZONASI DENGAN BANTUAN GELOMBANG ULTRASONIK

HARYONO

*Departemen Kimia, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat*

**email : haryono@unpad.ac.id*

Abstrak. Biodiesel merupakan bahan bakar alternatif ramah lingkungan dan bersifat terbarukan. Biodiesel secara substansi kimia merupakan metil atau etil ester dari asam lemak rantai panjang sehingga dapat disintesis dari berbagai jenis sumber asam lemak hayati. Minyak biji kapuk adalah salah satu sumber asam lemak hayati potensial karena umumnya memiliki kadar asam lemak bebas tinggi sehingga terkelompok sebagai minyak non pangan. Sintesis biodiesel dapat dilakukan dengan berbagai modifikasi metode, salah satunya dengan memanfaatkan ozon sebagai agen pengoksidasi untuk menyederhanakan struktur molekul trigliserida dari minyak, dan melibatkan pemakaian gelombang ultrasonik untuk membantu proses pencampuran antar bahan. Tujuan dari penelitian ini adalah mempelajari pengaruh tahap ozonasi dan lama waktu transesterifikasi dengan bantuan gelombang ultrasonik terhadap karakteristik biodiesel yang dihasilkan dari minyak biji kapuk. Hasil penelitian menunjukkan bahwa ozonasi terhadap minyak biji kapuk selama 120 menit telah berhasil menyederhanakan struktur molekul trigliserida dari minyak. Transesterifikasi selama 180 menit terhadap minyak biji kapuk dengan bantuan gelombang ultrasonik pada frekuensi 25 kHz menghasilkan rendemen biodiesel tertinggi. Biodiesel yang dihasilkan dari semua variasi lama waktu transesterifikasi telah memenuhi Standar Biodiesel berdasarkan parameter bilangan asam, titik nyala, dan densitas. Namun berdasarkan parameter viskositas belum memenuhi syarat.

Kata kunci: biodiesel, minyak biji kapuk, ozon, transesterifikasi, ultrasonik

Abstract. Biodiesel is an alternative fuel that is environmentally friendly and renewable. Biodiesel chemically is a methyl or ethyl ester of long chain fatty acids so that it can be synthesized from various types of biological fatty acid sources. Kapok seed oil is a potential source of biological fatty acids because it generally has high levels of free fatty acids so that it is classified as a non-food oil. Biodiesel synthesis can be carried out with various modification methods, one of which is by utilizing ozone as an oxidizing agent to simplify the triglyceride molecular structure of the oil, and involving the use of ultrasonic waves to assist the mixing process between ingredients. The purpose of this study was to study the effect of the ozonation stage and the duration of transesterification using ultrasonic waves on the characteristics of biodiesel produced from kapok seed oil. The results showed that ozonation of kapok seed oil for 120 minutes had succeeded in simplifying the triglyceride molecular structure of the oil. Transesterification for 180 minutes of kapok seed oil with the help of ultrasonic waves at a frequency of 25 kHz resulted in the highest biodiesel yield. The biodiesel produced from all variations of the transesterification time has met the Biodiesel Standard based on the parameters of acid number, flash point, and density. However, based on the viscosity parameters it has not met the requirements.

Keywords: biodiesel, kapok seed oil, ozone, transesterification, ultrasonic

1. Pendahuluan

Biodiesel sebagai bahan bakar alternatif yang setara dengan minyak diesel, secara substansi kimia merupakan metil atau etil ester dari asam lemak rantai panjang. Asam lemak rantai panjang banyak ditemukan pada berbagai jenis minyak nabati dan lemak hewan. Oleh karena itu biodiesel dapat disintesis dari minyak nabati, lemak hewan, atau sumber-sumber asam lemak lainnya seperti limbah minyak goreng [1, 2]. Salah satu jenis minyak nabati sebagai bahan baku potensial pada sintesis biodiesel adalah minyak biji kapuk (*Ceiba pentandra*). Kandungan minyak pada biji kapuk sekitar 27-32%, tergantung varietas tanaman dan kondisi tanah maupun cuaca [3, 4]. Minyak biji kapuk merupakan minyak non pangan sehingga sangat menguntungkan sebagai bahan baku pada pembuatan biodiesel karena tidak bersaing dengan minyak pangan. Selain itu, pemakaian minyak pangan pada pembuatan biodiesel cenderung meningkatkan biaya produksi [5].

Komposisi asam lemak dan sifat kimia-fisik dari minyak biji kapuk bervariasi. Haryono dan Marliani melaporkan bahwa pada minyak biji kapuk terdapat asam lemak tak jenuh sekitar 63,27% [6]. Studi lainnya menyatakan minyak biji kapuk tersusun dari 41,37% asam lemak tak jenuh dan 40,8% asam lemak jenuh dengan bilangan penyabunan sebesar 152,79 mg KOH/g minyak dan bilangan iodine 129,79 mg I₂/100 g minyak [4]. Hal ini menyebabkan minyak biji kapuk mudah tengik, sehingga kurang baik untuk dikembangkan sebagai minyak pangan. Pemanfaatan minyak biji kapuk, minyak nabati yang didominasi oleh asam lemak tak jenuh rantai panjang, sebagai bahan baku pada pembuatan biodiesel akan cenderung menurunkan bilangan cetana dan meningkatkan viskositas dari biodiesel yang dihasilkan, serta dapat memicu reaksi polimerisasi pada saat pembakaran [7, 8].

Upaya penurunan derajat ketidakjenuhan dan penyederhanaan rantai karbon pada asam lemak minyak biji kapuk dapat dilakukan dengan ozonasi. Ozonasi telah terbukti menurunkan derajat ketidakjenuhan pada minyak kedelai dan minyak zaitun [9]. Salah satu produk dari ozonasi terhadap minyak nabati adalah asam lemak bebas. Asam lemak bebas yang terbentuk dari ozonasi minyak nabati, misalnya minyak biji kapuk, selanjutnya dapat dikonversi menjadi biodiesel dengan reaksi esterifikasi [2].

Istilah Ultrasonik mengacu pada gelombang suara yang berada di atas frekuensi pendengaran manusia, yaitu sekitar 20 kHz (kilohertz), atau 20.000 siklus per detik. Jenis gelombang suara yang bergetar cepat ini mentransfer energi ke dalam cairan dan menciptakan getaran hebat, yang membentuk gelembung “kavitasi” saat bagian suara bertekanan rendah melewati cairan. Setelah gelombang berlalu, gelembung-gelembung itu pecah, menyebabkan kontraksi tiba-tiba pada cairan sehingga menghasilkan pencampuran yang sangat intens di area gelembung tersebut [10]. Pencampuran intens tersebut dapat dimanfaatkan untuk berbagai keperluan, salah satunya untuk pengontakan antar materi reaktan maupun katalis pada sintesis biodiesel.

Biodiesel secara konvensional disintesis melalui tahap esterifikasi dan transesterifikasi katalitik dengan bantuan pemanasan dan pengadukan. Tahap esterifikasi menggunakan katalis asam sulfat, sedangkan pada transesterifikasi digunakan katalis potassium atau sodium hidroksida. Pada prakteknya, metode sintesis biodiesel secara konvensional tersebut membutuhkan waktu pereaksian relatif lama, yaitu 1-2 jam [2, 11] dan energi relatif besar. Kebutuhan waktu pada tahap

esterifikasi maupun tran-esterifikasi dalam sintesis biodiesel secara konvensional tersebut dapat direduksi dengan memanfaatkan bantuan gelombang ultrasonik [12].

Tujuan penelitian ini adalah mempelajari pengaruh penggunaan gelombang ultrasonik dan ozon terhadap rendemen dan sifat kimia fisik dari biodiesel yang disintesis dari minyak biji kapuk.

2. Metode Penelitian

2.1. Penghilangan gum dari minyak biji kapuk

Sejumlah tertentu minyak biji kapuk (dari daerah Terboyo, Semarang, Jawa Tengah) dipanaskan pada suhu 70 °C dan diaduk selama 15 menit, kemudian ditambahkan larutan asam fosfat 85% (BrataChem) sebanyak 0,1% terhadap berat minyak, dan diaduk selama 5 menit. Selanjutnya akuades sebanyak 20% dari berat minyak ditambahkan dan diaduk selama 5 menit.

Campuran hasil penghilangan *gum* (getah) didinginkan sampai suhu ruang. Campuran kemudian disentrifugasi pada kecepatan 3500 rpm selama 25 menit, lalu disaring untuk memisahkan *gum* dari minyak. Minyak biji kapuk dari tahap penghilangan *gum* selanjutnya dianalisis sifat kimia fisiknya (bilangan asam, bilangan penyabunan, densitas, dan viskositas) dan komposisi asam lemaknya dengan instrumen KG-SM, Kromatografi Gas-Spektroskopi Massa (Shimadzu QP 2010 ULTRA).

2.2. Penyederhanaan struktur molekul minyak biji kapuk dengan ozon

Minyak biji kapuk dari tahap penghilangan *gum* dimasukkan ke dalam bejana ozonasi yang dilengkapi pengaduk. Saluran pengaliran ozon dihubungkan dari *ozone generator* (Ozone S2Q-OZ/2) ke bagian dasar dari bejana ozonasi. Oksidasi terhadap minyak dilakukan dengan mengoperasikan *ozone generator* yang mampu mengubah oksigen dalam udara menjadi ozon dengan kapasitas laju alir 7,56 L/menit selama 120 menit, dan dibantu dengan reagen pengoksidasi hidrogen peroksida (Merck) sebanyak 0,1%.

Ozon berkontak dengan minyak biji kapuk selama ozonasi dengan cara digelembungkan pada bagian dasar bejana ozonasi. Minyak biji kapuk dari tahap ozonasi kemudian dianalisis sifat kimia-fisiknya (bilangan asam, bilangan penyabunan, densitas, dan viskositas) dan komposisi asam lemaknya dengan instrumen KG-SM.

2.3. Esterifikasi dan Transesterifikasi Minyak Biji Kapuk Teroksidasi Ozon

Minyak biji kapuk dari tahap ozonasi selanjutnya diesterifikasi dengan bantuan gelombang ultrasonik untuk mengkonversi asam lemak bebas dari minyak menjadi metil ester (biodiesel). Minyak biji kapuk dan metanol dengan rasio mol 1:6 dimasukkan ke dalam bejana reaktor yang telah dilengkapi *ultrasonic generator*. H₂SO₄ 98% (Merck) sebanyak 1% (v/v) dicampurkan dengan minyak sebagai katalis. Campuran reaktan dan katalis direaksikan pada suhu 60 °C selama 30 menit. Sebelum diselenggarakan esterifikasi tersebut, dilakukan pencampuran terlebih dahulu antara minyak, metanol, dan katalis dengan bantuan ultrasonik pada frekuensi 35 kHz [13]. Fase minyak dari esterifikasi kemudian dipisahkan dari fase gliserol dengan pengendapan di dalam corong pisah. Fase minyak dimurnikan dari

sisanya metanol dan katalis dengan distilasi pada suhu didih metanol, pencucian dengan aquades, dan pengeringan.

Fase minyak dari esterifikasi setelah dimurnikan selanjutnya dikonversi lanjut menjadi biodiesel melalui tahap transesterifikasi. Fase minyak dari esterifikasi dipanaskan pada suhu 100 °C di dalam reaktor, kemudian metanol (*pure grade*, Merck) dengan rasio mol minyak terhadap metanol 1:12 dan kalsium oksida (*pure grade*, Merck) sebagai katalis sebanyak 3% dimasukkan ke dalam reaktor tersebut. Fase minyak, metanol, dan katalis dicampurkan dengan bantuan gelombang ultrasonik 35 kHz selama 30 detik. Hasil pencampuran direaksikan pada suhu 60 °C dengan waktu reaksi divariasikan pada 90, 120, dan 180 menit. Selanjutnya, campuran hasil reaksi disaring dengan penyaring buchner untuk memisahkan katalis kalsium oksida sisa. Biodiesel di dalam campuran filtrat selanjutnya dimurnikan dengan pengendapan fase gliserol dan distilasi metanol. Biodiesel dari tahap transesterifikasi pada setiap variasi waktu reaksi ditentukan rendemennya dan dikarakterisasi sifat kimia fisiknya (bilangan asam, bilangan penyabunan, titik nyala, densitas, dan viskositas kinematik). Biodiesel dari waktu reaksi optimum kemudian dianalisis komposisi metil esterya dengan instrumen KG-SM. Rendemen biodiesel dihitung berdasarkan Persamaan (1).

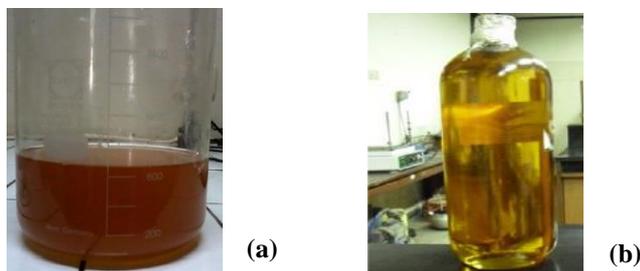
$$\text{Rendemen biodiesel} = \frac{W_{\text{Biodiesel}}}{W_{\text{Minyak biji kapuk}}} \times 100\% \quad (1)$$

Dengan: $W_{\text{Biodiesel}}$ dan $W_{\text{Minyak biji kapuk}}$ = berat biodiesel murni dan minyak biji kapuk.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Karakteristik kimia fisik minyak biji kapuk dari tahap penghilangan *gum*

Gum atau getah pada minyak nabati secara substansi kimia adalah senyawa fosfatida dan fosfolipid. Beberapa jenis *gum*, khususnya garam kalsium dan magnesium dari *gum*, merupakan pengemulsi kuat. Oleh karena itu, jika pada sintesis biodiesel terbentuk sabun, sabun akan sulit dipisahkan dari biodiesel. Selain itu, kandungan *gum* di dalam produk biodiesel dapat menyebabkan terbentuknya endapan yang tidak diinginkan pada biodiesel yang berpotensi tertimbun membentuk kerak di ruang bakar dan saluran bahan bakar [2].



Gambar 1. Penampilan Fisik dari Minyak Biji Kapuk: (a) Sebelum dan (b) Setelah Tahap Penghilangan *Gum*

Dari hasil pengamatan, minyak kapuk dari tahap penghilangan getah memiliki warna kuning cerah dan tidak lagi dijumpai endapan berwarna putih. Pada minyak sebelum penghilangan getah, minyak berwarna lebih gelap. Perbedaan penampilan

fisik dari minyak biji kapuk antara sebelum dan sesudah tahap penghilangan *gum* ditampilkan pada Gambar 1.

Hasil karakterisasi sifat kimia fisik dan komposisi asam lemak terhadap minyak biji kapuk setelah tahap penghilangan *gum* secara berturut-turut ditampilkan pada Tabel 1 dan Tabel 2. Data pada Tabel 1 menunjukkan bahwa bilangan penyabunan dari minyak biji kapuk bernilai relatif rendah, sedangkan nilai viskositasnya relatif tinggi. Pada minyak dan lemak terdapat kecenderungan dengan semakin rendahnya bilangan penyabunan, massa molar dari minyak dan lemak tersebut akan semakin tinggi. Sedangkan semakin tingginya massa molar dari minyak dan lemak mengindikasikan bahwa minyak dan lemak tersebut tersusun dari trigliserida dengan didominasi oleh asam lemak rantai panjang. Dengan demikian, pada minyak biji kapuk terdapat lebih banyak asam lemak rantai panjang pada struktur trigliseridanya. Jenis asam lemak rantai panjang akan menyebabkan gaya gesek antar molekul semakin kuat dan intensif. Selain itu, asam lemak rantai panjang menyebabkan gaya gesek internal antar molekul asam lemak semakin kuat dan intensif sehingga viskositas dari minyak biji kapuk cenderung tinggi [14].

Tabel 1. Sifat Kimia Fisik Minyak Biji Kapuk Setelah Tahap Penghilangan Gum

Parameter (Satuan)	Nilai
Bilangan asam (mg KOH/g)	17,11
Bilangan penyabunan (mg KOH/g)	78,84
Densitas pada 40 °C (kg/m ³)	907,5
Viskositas pada 40 °C (mm ² /s)	30,09

Hasil karakterisasi sifat kimia fisik dari minyak biji kapuk tersebut terkonfirmasi oleh hasil analisis penentuan komposisi asam lemak yang ditampilkan pada Tabel 2. Minyak biji kapuk pada penelitian ini, sesuai hasil analisis dengan KG-SM, didominasi oleh asam lemak tak jenuh rantai panjang, yaitu asam oleat (C18:1 cis) sebanyak 47,23% dan asam linoleat (C18:2) sebanyak 8,22%. Penelitian lain melaporkan hasil berbeda, namun tetap menyatakan bahwa minyak biji kapuk didominasi oleh asam lemak tak jenuh. Minyak biji kapuk dilaporkan tersusun dari 22,3% asam palmitat (C16:0) dan 3,36% asam stearat (C18:0) sebagai asam lemak jenuh, serta 70,71% asam linoleate sebagai asam lemak tak jenuh [15]. Perbedaan jenis dan komposisi asam lemak dari minyak nabati merupakan fakta yang biasa terjadi sebagai akibat perbedaan iklim, varietas tanaman, masa panen, dan metode penyiapan [16].

Tabel 2. Tiga Jenis Asam Lemak Utama Penyusun Minyak Biji Kapuk Setelah Tahap Penghilangan Gum

Asam Lemak	Jenis Asam Lemak	Kadar (%)
Asam palmitat (C16:0)	Jenuh	20,54
Asam stearat (C18:0)		4,88
Asam lignoserat (C24:0)		3,39
Asam oleat (C18:1 cis)	Tak jenuh	47,23
Asam linoleat (C18:2)		8,22
Asam palmitoleat (C16:1)		0,54

3.2. Karakteristik minyak biji kapuk setelah tahap ozonasi

Tahap ozonasi terhadap minyak biji kapuk dimaksudkan untuk menyederhanakan struktur molekul dari minyak biji kapuk dengan cara memperpendek rantai karbon dari asam lemak penyusun struktur molekul trigliserida melalui pemutusan rantai karbon pada ikatan rangkap dari asam lemak. Pemutusan ikatan rangkap tersebut akan dihasilkan trigliserida dengan rantai karbon asam lemak lebih pendek dan sejumlah asam lemak bebas. Oleh karena itu, salah satu ukuran keberhasilan dari tahap ozonasi terhadap minyak dapat ditinjau dari perubahan bilangan asam dari minyak. Semakin meningkat bilangan asam dari minyak setelah ozonasi menunjukkan tahap ozonasi dikatakan semakin berhasil dalam menyederhanakan struktur molekul dari minyak.

Tabel 3. Sifat Kimia Fisik Minyak Biji Kapuk Sebelum dan Setelah Tahap Ozonasi

Parameter	Nilai	
	Sebelum	Setelah
Bilangan asam (mg KOH/g minyak)	17,11	21,86
Bilangan penyabunan (mg KOH/g minyak)	78,84	99,59
Densitas pada 40 °C (kg/m ³)	907,5	906,0

Ozonasi terhadap minyak biji kapuk dilakukan selama 120 menit. Karakteristik kimia fisik dan komposisi asam lemak dari minyak setelah tahap penyerhanaan struktur molekul ini ditampilkan pada Tabel 3 dan dan Tabel 4. Bilangan asam pada minyak biji kapuk meningkat dari 17,11 mg KOH/g minyak (sebelum ozonasi) menjadi 21,86 mg KOH/g minyak. Bilangan asam menunjukkan kandungan asam lemak bebas di dalam minyak. Semakin meningkatnya bilangan asam dari minyak biji kapuk setelah tahap ozonasi mengindikasikan bahwa telah terjadi proses pemutusan ikatan rangkap pada asam lemak penyusun minyak biji kapuk. Semakin besar bilangan asam, maka kadar asam lemak bebas dalam minyak semakin meningkat [17]. Hasil penelitian ini bersesuaian dengan penelitian Sadowska dkk. [9]. Pada penelitian tersebut, bilangan asam dari minyak zaitun mengalami peningkatan menjadi 1,7 mg NaOH/g setelah minyak diozonasi selama 7 jam, jika dibandingkan dengan tanpa diozonasi (0,3 mg NaOH/g). Sedangkan ozonasi terhadap minyak kedelai selama 7 jam meningkatkan bilangan asam dari 0,3 menjadi 1,9 mg NaOH/g.

Tabel 4. Jenis dan Komposisi Utama Asam Lemak dari Minyak Biji Kapuk Setelah Ozonasi

Asam Lemak	Jenis Asam Lemak	Kadar (%)
Asam palmitat (C16:0)	Jenuh	19,42
Asam stearat (C18:0)		5,30
Asam arakidat (C20:0)		3,17
Asam linoleat (C18:2)	Tak jenuh	32,60
Asam oleat (C18:1 cis)		12,38
Asam palmitoleat (C16:1)		0,43

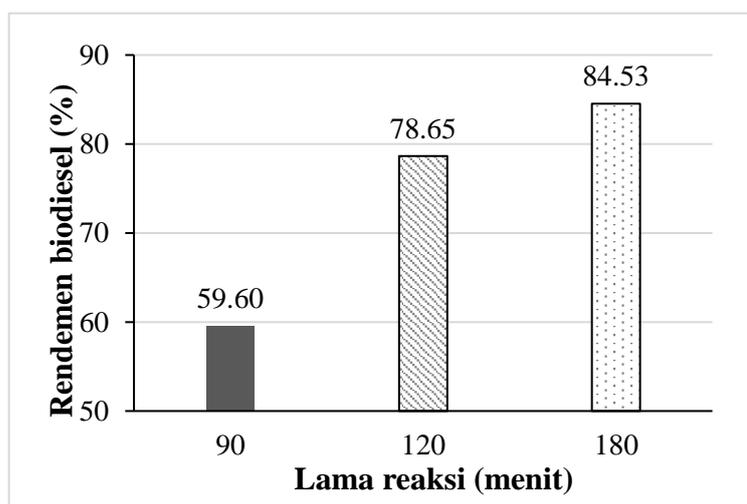
Peningkatan bilangan penyabunan minyak biji kapuk setelah tahap ozonasi dari 78,84 menjadi 99,59 mg KOH/g mengindikasikan struktur molekul trigliserida dari

minyak semakin sederhana sebagai akibat terputusnya ikatan rangkap pada asam lemak selama ozonasi. Pemutusan ikatan rangkap tersebut, terutama pada asam lemak yang mengandung *polyunsaturated*, mengakibatkan penurunan densitas dari minyak [14].

Hasil analisis komposisi asam lemak pada minyak biji kapuk seperti ditampilkan pada Tabel 4 menunjukkan bahwa tahap ozonasi terhadap minyak biji kapuk mengakibatkan perubahan komposisi asam lemak. Secara akumulasi, minyak biji kapuk setelah ozonasi mengalami penurunan kadar asam lemak tak jenuh dimana asam oleat (C18:1 cis) merupakan asam lemak tak jenuh yang paling dominan mengalami perubahan struktur molekul sehingga kadarnya mengalami penurunan paling besar setelah diozonasi. Kadar asam oleat pada minyak biji kapuk setelah ozonasi menjadi 12,38% dari yang sebelumnya sebesar 47,23%.

3.3. Rendemen dan karakteristik kimia fisik biodiesel

Pada penelitian ini biodiesel atau metil ester disintesis dalam 2 tahap proses, yaitu esterifikasi dan transesterifikasi. Esterifikasi dilakukan untuk mengkonversi asam lemak bebas yang terdapat pada minyak biji kapuk setelah mengalami tahap penyederhanaan struktur molekul minyak, menjadi biodiesel. Sedangkan tahap transesterifikasi dilaksanakan untuk mengkonversi trigliserida pada minyak biji kapuk menjadi biodiesel. Pada kedua tahap sintesis biodiesel tersebut digunakan sistem reaksi katalitik dengan perbedaan signifikan, dimana pada esterifikasi diterapkan reaksi katalitik homogen dengan katalis asam, dan pada transesterifikasi diterapkan reaksi katalitik heterogen basa. Untuk keperluan pencampuran antar bahan reaksi (minyak, metanol, dan katalis), pada kedua tahap sintesis biodiesel tersebut digunakan bantuan gelombang ultrasonik dengan frekuensi 35 kHz masing-masing selama 30 detik. Pengaruh waktu transesterifikasi minyak biji kapuk terozonasi terhadap rendemen biodiesel ditampilkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Pengaruh Lama Reaksi Transesterifikasi Minyak Biji Kapuk Terozonasi terhadap Rendemen Biodiesel

Hasil penelitian pada Gambar 2 menunjukkan bahwa semakin lama transesterifikasi dilakukan, rendemen biodiesel yang diperoleh semakin banyak. Pada reaksi dengan model operasi pertaiaan atau *batch*, derajat konversi reaktan menjadi produk

berbanding lurus terhadap lama waktu reaksi [18], sehingga rendemen produk reaksi menjadi semakin tinggi seiring dengan lamanya waktu reaksi. Selain itu, hubungan antara waktu reaksi dengan rendemen biodiesel tersebut menunjukkan bahwa reaksi berlangsung ke satu arah, atau belum mencapai kondisi kesetimbangan, yaitu ke arah pembentukan produk (biodiesel).

Hasil penelitian juga menunjukkan bahwa lama reaksi pada tahap transesterifikasi berpengaruh terhadap karakteristik kimia fisik dari biodiesel yang dihasilkan. Tabel 5 menampilkan karakteristik biodiesel minyak biji kapuk dari variasi waktu transesterifikasi dan perbandingannya dengan Standar Biodiesel [19]. Lama waktu transesterifikasi tidak memberikan hubungan yang konsisten terhadap karakteristik kimia fisik biodiesel yang dihasilkan. Penurunan secara signifikan nilai bilangan asam dari sebelum tahap esterifikasi dan transesterifikasi sebesar 21,86 mg KOH/g minyak menjadi 0,35 – 0,46 mg KOH/g minyak setelah transesterifikasi menunjukkan bahwa hampir semua asam lemak bebas yang terdapat pada minyak biji kapuk terozonasi telah berhasil dikonversi menjadi biodiesel, khususnya pada saat tahap esterifikasi. Titik nyala biodiesel dari semua variasi waktu reaksi telah memenuhi Standar Biodiesel, yaitu di atas 100 °C. Titik nyala pada biodiesel umumnya dikaitkan dengan tingkat kemurnian biodiesel dari keberadaan pengotor berupa metanol, karena metanol memiliki titik nyala jauh di bawah (12,5 °C) daripada titik nyala metil ester atau biodiesel murni [20]. Oleh karena itu, semakin banyak kadar metanol dalam biodiesel mengakibatkan titik nyala biodiesel semakin rendah dari yang seharusnya, demikian sebaliknya.

Tabel 5. Perbandingan Karakteristik Kimia Fisik Biodiesel dari Variasi Waktu Lama Transesterifikasi terhadap Minyak Biji Kapuk Terozonasi

Parameter	Biodiesel (menit)			Standar Biodiesel
	90	120	180	
Bilangan asam (mg KOH/g minyak)	0,46	0,35	0,38	Maks. 0,5
Bilangan penyabunan (mg KOH/g minyak)	119,99	112,58	122,95	-
Densitas pada 40 °C (kg/m ³)	897	899	898	850-890
Viskositas pada 40 °C (mm ² /s)	20,2	16,6	15,8	2,3-6,0
Titik nyala (°C)	125	116	121	Min. 100

Bilangan penyabunan biodiesel dari berbagai variasi waktu transesterifikasi sebesar 112,58 – 122,95 mg KOH/g minyak. Nilai bilangan penyabunan dari biodiesel tersebut sudah cukup signifikan terjadi kenaikan jika dibandingkan dengan minyak biji kapuk sebelum mengalami tahap esterifikasi dan transesterifikasi, yaitu sebesar 99,59 mg KOH/g minyak. Kenaikan bilangan penyabunan tersebut mengindikasikan bahwa sejumlah tertentu trigliserida dari minyak biji kapuk telah terkonversi menjadi metil ester (biodiesel) pada tahap transesterifikasi, namun dengan tingkat konversi belum mencapai kondisi optimum. Hal tersebut terkonfirmasi dari nilai viskositas biodiesel dari semua variasi waktu transesterifikasi yang masih lebih tinggi dari Standar Biodiesel.

4. Kesimpulan

Perlakuan ozonasi dan penggunaan gelombang ultrasonik pada sintesis biodiesel dari minyak biji kapuk berpengaruh terhadap nilai rendemen dan karakteristik kimia fisik biodiesel yang dihasilkan. Ozonasi terhadap minyak biji kapuk mengakibatkan struktur molekul trigliserida dari minyak menjadi lebih sederhana dengan diindikasikan oleh kenaikan bilangan asam dan bilangan penyabunan. Hasil tersebut dikonfirmasi oleh penurunan kadar asam lemak rantai panjang jenis asam oleat.

Asam lemak bebas dari minyak biji kapuk sebagai salah satu produk dari tahap ozonasi telah relatif berhasil dikonversi secara komplit menjadi biodiesel pada tahap esterifikasi. Sedangkan trigliserida dari minyak biji kapuk masih relatif belum terkonversi secara lengkap menjadi biodiesel pada tahap transesterifikasi. Hal tersebut ditunjukkan oleh parameter viskositas dari biodiesel yang belum sesuai dengan Standar Biodiesel dan terkonfirmasi oleh nilai bilangan penyabunan dari biodiesel.

Daftar Pustaka

1. A. Hayyan, M.Z. Alam, M.E.S. Mirghani, N.A. Kabbashi, I.N.M. Hakimi, Y.M. Siran, S. Tahiruddin, Production of biodiesel from sludge palm oil by esterification process, *Journal of Energy and Power Engineering*, Vol. 4 No. 1 (2010), p. 11–17.
2. V.J. Gerpen, B. Shanks, R. Pruszko, D. Clements, G. Knothe, *Biodiesel Production Technology*, National Renewable Energy Laboratory (2004), US Department of Energy, Colorado, USA.
3. G.B. Nkouam, G.A. Adjoh, C.B. Tchankou Leudeu, C. Kouebou, C. Tchiegang, C. Kapseu, Physico-chemical properties of fruits, seed and oil of kapok (*Ceiba pentandra* Gaertn.) tree of different provenances from the Northern Part of Cameroon, *International Journal of Agriculture Innovations and Research*, Vol. 6 No. 2 (2017), p. 275–278.
4. P.S. Montcho, L. Tchiakpe, G. Nonviho, F.T.D. Bothon, et al. Fatty acid profile and quality parameters of *Ceiba pentandra* (L.) seed oil: a potential source of biodiesel, *Journal of Petroleum Technology and Alternative Fuels*, Vol. 9 No. 3 (2018), p. 14–19.
5. S. Vedharaj, R. Vallinayagam, W.M. Yang, S.K. Chou, K.J.E. Chua, P.S. Lee, Experimental investigation of kapok (*Ceiba pentandra*) oil biodiesel as an alternate fuel for diesel engine, *Energy Conversion and Management*, Vol. 75 (2013), p. 773–779.
6. Haryono, A. Marliani, Analisis mutu biosolar pada variasi formulasi blending biodiesel dari minyak biji kapuk dengan minyak solar, *Eksergi*, Vol. 11 No. 2 (2014), p. 25–30.
7. G. Knothe, J.V. Gerpen, J. Krahl, *The Biodiesel Handbook*, AOCS Press (2005), Champaign-Illinois, USA.
8. F. Ganduglia, *Handbook on Biofuels*, ARPEL's Refining Committee (2009), Montevideo, Uruguay.
9. J. Sadowska, B. Johansson, E. Johannessen, R. Friman, L. Broniarz-Press, J.B. Rosenholm, Characterization of ozonated vegetable oils by spectroscopic and

- chromatographic methods, *Chemistry and Physics of Lipids*, Vol. 151 (2008), 85-91.
10. Biodiesel TechNotes, Faster biodiesel processing with ultrasound-assisted reactors, Department of Biological and Agricultural Engineering (2012), University of Idaho, Moscow.
 11. S. Yan, M. Kim, S. Mohan, S.O. Salley, K.Y. Simon, Effects of preparative parameters on the structure and performance of Ca-La metal oxide catalysts for oil transesterification, National Biofuels Energy Laboratory (2010), Wayne State University, USA.
 12. A.S. Badday, A.Z. Abdullah, K.T. Lee, M. Khayoon, Intensification of biodiesel production via ultrasonic-assisted process: a critical review on fundamentals and recent development, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 16 (2012), p. 4574–4587.
 13. S. Larпкиattaworn, J. Chalermchai, T. Rattikan, T. Siriporn, Ultrasonic on transesterification reaction for biodiesel production, Biomass Asia Workshop (November 2010), Jakarta, Indonesia.
 14. S.D. Sanford, J.M. White, P.S. Shah, C. Wee, M.A. Valverde, G.R. Meier, Technical report: Feedstock and biodiesel characteristics report, Iowa Renewable Energy Group Inc. (2009), p. 1–136.
 15. E.M.M. Putri, M. Rachimoellah, N. Santoso, F. Pradana, Biodiesel production from kapok seed oil (*Ceiba Pentandra*) through the transesterification process by using CaO as catalyst, *Global Journal of Researches in Engineering*, Vol. 12 No. 2(2012), p. 1–5.
 16. B.R. Moser, Biodiesel production, properties, and feedstocks, *Plant*, Vol. 5 (2009), p. 229–266. doi: 10.1007/s11627-009-9204-z
 17. D.T. Almeida, T.V. deViana, M.M. Costa, C. deS. Silva, S. Feitosa, Effects of different storage conditions on the oxidative stability of crude and refined palm oil, olein and stearin (*Elaeis guineensis*), *Food Science and Technology*, Vol. 39 No. 1(2019), p. 211–217.
 18. P. Harriott, *Chemical reactor design*, 1st Edition, Marcel Dekker, Inc. (2003), New York, p. 13–15.
 19. Badan Standardisasi Nasional, SNI 7182-2015, Standar Nasional Indonesia Biodiesel (2015), Jakarta.
 20. Alternative Fuels Data Center: Fuel properties comparison, Department of Energi (2021), USA. Tersedia di:
https://afdc.energy.gov/files/u/publication/fuel_comparison_chart.pdf
[Diakses tanggal 16 Desember 2021]

STUDI KOMPUTASI EFEK SONOFISIKA DARI GELEMBUNG MIKRO TERHADAP DEFORMASI LAPISAN LOGAM

DAVID^{1,*}, FERRY FAIZAL^{1,2}, SAHRUL HIDAYAT¹

¹ *Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat*

² *Pusat Unggulan Iptek Perguruan Tinggi Nano Powder Fungsional (Finder U-CoE)
Universitas Padjadjaran, Jl. Raya Bandung-Sumedang Km 21 Jatinangor, 45363, Jawa Barat*

*email : david18001@mail.unpad.ac.id

Abstrak. Siklus kavitasi terjadi ketika gelembung mikro diberikan paparan gelombang ultrasonik, yang merupakan fase pengembangan, osilasi, dan pecahnya gelembung di zat cair. Saat pecah, gelembung mikro akan menghasilkan efek sonofisika berupa tekanan dan suhu yang tinggi, yang dapat digunakan untuk mendeformasi permukaan bahan. Telah dilakukan simulasi berdasarkan model dinamika gelembung Rayleigh–Plesset untuk menginvestigasi pengaruh jari-jari awal gelembung terhadap efek sonofisika yang dihasilkan, dan dampaknya terhadap deformasi lapisan logam. Hasil simulasi menyatakan bahwa gelembung dengan jari-jari awal yang kecil memiliki siklus osilasi yang lebih intens dan menghasilkan efek sonofisika yang lebih besar, sehingga memiliki efektivitas yang lebih tinggi untuk mendeformasi lapisan logam.

Kata kunci: Kavitasi, Gelembung Mikro, Ultrasonik, Sonofisika, Logam

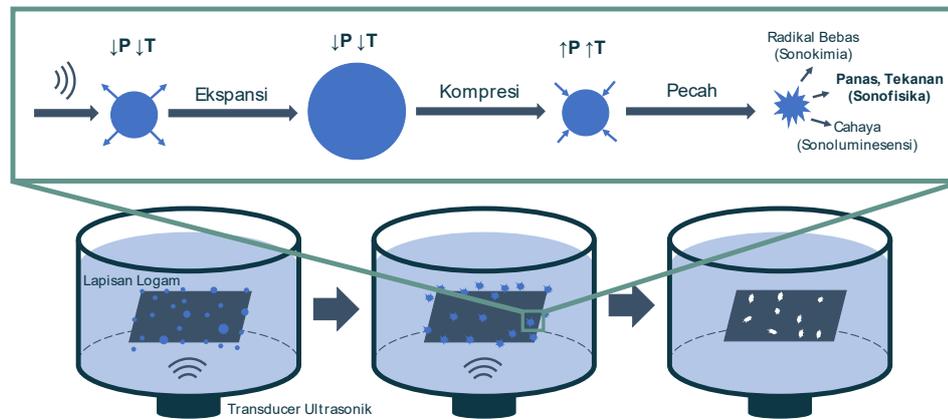
Abstract. A cavitation cycle occurs when the microbubble is exposed to an ultrasound field, which is a phase of the formation, growth, oscillation, and collapse of bubbles in a liquid. When a bubble collapses, it will produce sono-physical effects in the form of high pressure and temperature, which can be used to deform the surface of the surrounding material. A simulation based on Rayleigh–Plesset model on bubble dynamics is conducted to investigate the effect of the initial bubble radii on the resulting sono-physical effects, and its impact on metal surface deformation. The simulation results state that bubbles with smaller initial radii have more intense oscillation cycles and produce bigger sono-physical effects, so they have higher effectiveness for deforming metal films.

Keywords: Cavitation, Microbubble, Ultrasound, Sonophysics, Metal

1. Pendahuluan

Pada era modern ini, banyak teknologi maju yang digunakan untuk pengembangan berbagai inovasi, salah satunya melalui pemanfaatan gelombang ultrasonik. Gelombang ultrasonik adalah gelombang akustik yang memiliki frekuensi lebih besar dari 20 kHz, dan tidak dapat didengar oleh manusia. Karena memiliki frekuensi gelombang yang tinggi, ultrasonik banyak digunakan pada reaksi degradasi pewarna, pengolahan air limbah, desinfeksi air minum, deaktivasi bakteri, sampai proses pembersihan polutan dan partikel berukuran mikron dari permukaan padatan seperti logam [1] yang dapat diterapkan pada pembersihan alat-alat kedokteran dan perhiasan. Meskipun tergolong ke dalam material yang paling kuat (relatif terhadap keramik dan polimer), logam memiliki sifat mekanis yang berbeda-

beda untuk tiap jenisnya. Oleh sebab itu, perlu dikaji ketahanan berbagai jenis logam ketika berada pada proses pembersihan ultrasonik melalui siklus kavitasi.



Gambar 1. Dinamika Gelembung pada Medan Ultrasonik

Kavitasi adalah peristiwa terbentuknya gelembung-gelembung uap di dalam zat cair sebagai akibat turunnya tekanan di bawah tekanan uap jenuhnya [2]. Gelembung pada cairan terbentuk melalui proses difusi gas yang terlarut pada cairan ke nukleasi, yaitu rongga dalam cairan, baik itu celah pada permukaan bahan atau bagian kecil yang tidak ditempati oleh cairan. Ukuran gelembung bergantung pada tekanan dan suhu di sekitarnya. Ketika tekanan cairan di sekitar rongga rendah, kelarutan gas dalam zat cair menjadi berkurang sehingga memudahkan gas untuk berdifusi ke dalam rongga untuk membentuk gelembung yang besar. Sebaliknya jika suhu cairan meningkat, ukuran gelembung dan kelarutan gas dalam cairan ikut menurun [3]. Gelembung dengan ukuran 1-100 mikrometer disebut gelembung mikro. Pada saat zat cair terpapar gelombang ultrasonik, terjadi proses pengembangan, osilasi, dan pecahnya gelembung gas karena cairan tersebut mengalami siklus ekspansi (*rarefaction*) dan kompresi (*compression*) dari tekanan akustik seperti tampak pada Gambar 1. Pada saat siklus ekspansi, tekanan cairan menjadi rendah sehingga gelembung membesar. Kemudian pada siklus kompresi, gelembung akan termampatkan, hingga akhirnya pecah [4].

Rayleigh berupaya menjelaskan fenomena pecahnya gelembung dalam penelitiannya pada tahun 1917 [5]. Fenomena kavitasi stabil dari gelembung gas kemudian dijelaskan oleh Plesset [6], sehingga disebut persamaan Rayleigh–Plesset. Untuk menyederhanakan model, efek termal gelombang ultrasonik, perpindahan panas dan massa melalui dinding gelembung, perubahan fase dan reaksi kimia diabaikan dan hanya mempertimbangkan gerakan radial gelembung [7]. Bentuk awal persamaan Rayleigh–Plesset ini mengabaikan efek viskositas serta kompresibilitas media sekitarnya, yang kemudian dilengkapi oleh Keller dan Miksis [8]. Persamaan gerak gelembung Keller–Miksis adalah:

$$\rho_L \left(R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 \right) = P_{ext}(t) - \frac{2\sigma}{R} - \frac{4\mu_L\dot{R}}{R} + P_{int}(R) \left(1 - \frac{3\kappa}{c}\dot{R} \right) \quad (1)$$

$$P_{ext}(t) = p_g - p_0 - p_a \cos(2\pi ft) \quad (2)$$

$$P_{int}(R) = \left(p_0 - p_g + \frac{2\sigma}{R} \right) \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\kappa} \quad (3)$$

di mana $R(t)$ adalah jari-jari gelembung, R_0 adalah jari-jari awal/kesetimbangan, κ adalah eksponen dari hubungan barotropik, ρ_L adalah densitas zat cair, μ_L adalah viskositas cairan, p_0 adalah tekanan fluida statis, p_g adalah tekanan gas, p_a adalah amplitudo tekanan akustik, σ adalah tegangan permukaan antar permukaan gelembung dengan zat cair, c adalah cepat rambat gelombang akustik pada zat cair.

Ketika pecah, suhu dan tekanan pada daerah gelembung dapat mencapai nilai yang sangat tinggi. Nilai tekanan dalam gelembung dapat diperoleh dari persamaan (3), sedangkan suhu gelembung dapat diperoleh dari persamaan berikut:

$$T_g = T_0 \left(\frac{R_{max}}{R} \right)^{\kappa-1} \quad (4)$$

Dengan T_0 adalah suhu awal zat cair dan R_{max} adalah jari-jari maksimal gelembung. Nilai tekanan dan suhu akan maksimal saat gelembung pertama kali pecah/sebelum *rebound* pertama untuk tiap periode osilasi. Akibat suhu dan tekanan ekstrem tersebut, dihasilkanlah efek sonokimia dan efek sonofisika. Efek sonokimia adalah proses produksi radikal bebas, spesies reaktif untuk proses degradasi/oksidasi, polimerisasi, dan sintesis nanopartikel, dari reaksi pirolisis molekul air akibat suhu tinggi. Sedangkan efek sonofisika merupakan proses pembentukan turbulensi dan *shock wave* akibat gerakan transient gelembung [9], dan dapat memicu deformasi pada permukaan material yang berada di sekitarnya.

Struktur material dapat berubah bentuk secara geometris akibat penempatan beban luar dan perubahan temperatur. Saat bahan terus mengalami penambahan tegangan sampai melebihi batas elastisnya, maka bahan akan mengalami perubahan bentuk secara permanen hingga akhirnya terjadinya patahan. Logam, yang merupakan material dengan kekuatan terbesar, jika dikenai tegangan berulang akan mengalami kerusakan pada tegangan yang jauh lebih rendah dibandingkan yang dibutuhkan untuk menimbulkan perpatahan [10]. Begitupun dengan pengaruh suhu, ketika diberikan suhu tinggi, kekuatan dari logam menjadi menurun akibat mengalami pemuaihan hingga akhirnya akan meleleh. Oleh sebab itu, penelitian ini bertujuan untuk menginvestigasi seberapa besar efek sonofisika yang dapat dihasilkan dari gelembung mikro tunggal dan efektifitasnya untuk mendeformasi lapisan logam.

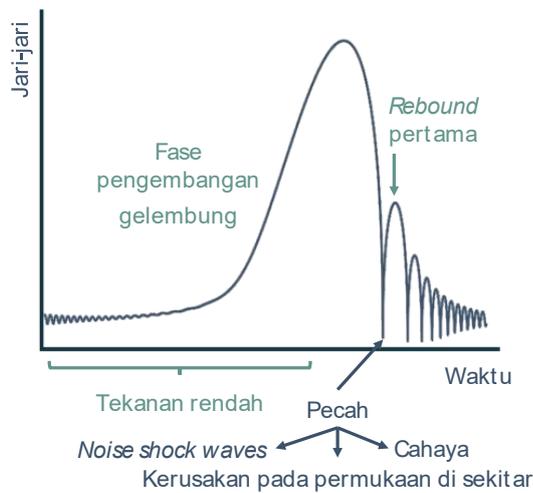
2. Metode Penelitian

Percobaan dilakukan dengan mencari solusi persamaan Rayleigh–Plesset, sehingga diperoleh besar jari-jari untuk setiap waktu, nilai tekanan dan suhu gelembung seperti tampak pada Gambar 2. Solusi persamaan diperoleh menggunakan *solver* `scipy.integrate.odeint()` dalam *package* Python SciPy, dengan *timestep* (dt) sebesar $2,5 \times 10^{-10}$, dan nilai parameter persamaan pada Tabel 1. Dengan parameter yang sama, simulasi dilakukan dengan variasi R_0 sebesar 10 - 30 μm .

Tabel 1. Parameter Persamaan Rayleigh–Plesset

Parameter	Simbol	Nilai
Eksponen hubungan barotropik	κ	1,33 N/m
Densitas Zat Air	ρ_L	998,2 kg/m ³

Viskositas Zat Air	μ_L	$8,9 \times 10^{-4}$ Pa.s
Tekanan Fluida Statis	p_0	1×10^5 Pa
Tekanan Gas	p_g	2337 Pa
Amplitudo Tekanan Ultrasonik	p_a	$1,155 \times 10^5$ Pa
Frekuensi Ultrasonik	f	$26,5 \times 10^3$ Hz
Cepat Rambat Gelombang Akustik di Air	c	1480 m/s
Tegangan permukaan	σ	0,0725 N/m
Suhu Zat Cair	T_0	300 K

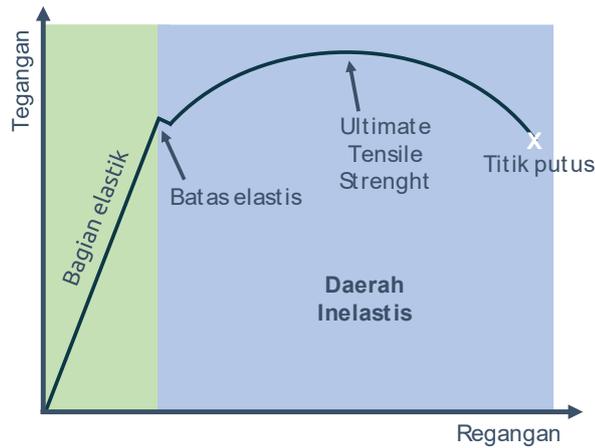


Gambar 2. Solusi Persamaan Rayleigh-Plesset

Setelah solusi diperoleh, nilai tekanan dan suhu maksimum diperoleh dari persamaan (3) dan (4). Besar efektivitas tekanan gelembung untuk mendeformasi lapisan logam diperoleh dari persamaan berikut:

$$\eta_g = \frac{p_{max}}{\zeta_m} \times 100\% \quad (5)$$

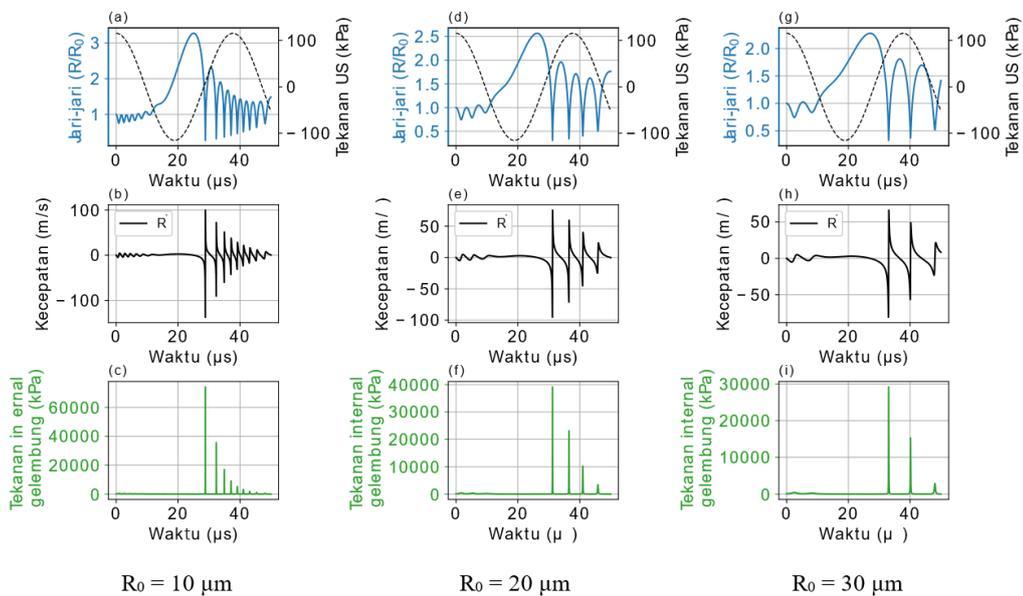
Dengan p_{max} tekanan maksimum gelembung dan ζ_m adalah kekuatan tarik (*ultimate tensile strength*) dari logam, yaitu $\zeta_{Al} = 90$ MPa, $\zeta_{Cu} = 200$ MPa, $\zeta_{Steel} = 380$ MPa, $\zeta_{Ti} = 520$ MPa [11]. Pengaruh suhu terhadap defromasi logam dilakukan dengan membandingkan suhu maksimal gelembung dengan titik leleh logam. Grafik tegangan-regangan sebuah material diperlihatkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Grafik Tegangan-Regangan sebuah Material

3. Hasil dan Pembahasan

Hasil simulasi dinamika gelembung pada medan ultrasonik ditunjukkan pada Gambar 4 untuk masing-masing variasi R_0 sebesar $10 \mu\text{m}$, $20 \mu\text{m}$, dan $30 \mu\text{m}$. Jari-jari awal gelembung merupakan parameter penting yang mempengaruhi gerak osilasi gelembung tersebut. Dari Gambar 4 (a, d, g), terlihat bahwa gelembung dengan R_0 yang lebih kecil mengalami osilasi yang lebih intens untuk satu periode siklus kavitasi. Seperti yang dikutip dari Kumar dan Moholkar [12], gelembung yang lebih kecil memiliki tekanan Laplace yang lebih tinggi sehingga terjadi ekspansi radial yang lebih besar.



Gambar 4. Dinamika Gelembung dengan $R_0 = 10 \mu\text{m}$, $20 \mu\text{m}$, dan $30 \mu\text{m}$

Dalam Gambar 4 (b, e, h), kecepatan dinding gelembung ditunjukkan sebagai fungsi dari waktu. Terlihat bahwa kecepatan dinding gelembung meningkat secara

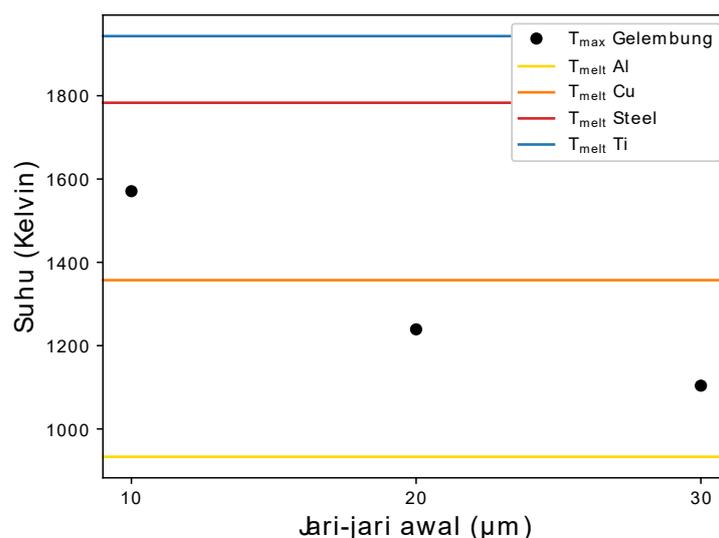
drastis di tahap akhir pecahnya gelembung sehingga mencapai 136,995 m/s, 95,267 m/s, dan 80,854 m/s untuk masing-masing variasi R_0 sebesar 10 μm , 20 μm , dan 30 μm . Kecepatan yang tinggi ini menghasilkan pecahan gelembung yang lebih kuat dan menghasilkan suhu dan tekanan yang ekstrem.

Gelembung yang lebih kecil mengalami fase pemecahan yang lebih intens, menghasilkan puncak suhu dan tekanan yang lebih tinggi, seperti yang dapat dilihat dari Gambar 4 (c, f, i). Hal ini disebabkan gelembung dengan radius kecil dapat mengalami banyak siklus akustik sebelum mencapai radius kritisnya untuk pecah, dan akibatnya puncak tekanan dan suhu tertinggi dicapai pada saat gelembung pertama kali pecah/sebelum *rebound* pertama untuk tiap periode osilasi. Dengan demikian, gelembung yang lebih kecil memberikan kontribusi yang lebih besar pada efek sonofisika. Besar tekanan dan suhu maksimal serta pengaruhnya terhadap deformasi lapisan logam ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Pengaruh Jari-jari Awal terhadap Tekanan dan Deformasi Logam

R_0 (μm)	P_{max} (kPa)	T_{max} (K)	Efektivitas Deformasi oleh Tekanan (%)			
			Al	Cu	Steel	Ti
10	74201,942	1570,819	82,447	37,101	19,527	14,270
20	39155,276	1239,136	43,506	19,578	10,304	7,530
30	29195,703	1103,897	32,440	14,598	7,683	5,615

Pada Tabel 2, terlihat bahwa gelembung dengan jari-jari awal yang kecil memiliki efektivitas yang lebih tinggi untuk mendeformasi lapisan logam karena dapat menghasilkan tekanan yang lebih tinggi. Dari keempat jenis lapisan logam, gelembung lebih mudah untuk merusak permukaan Aluminium karena unsur tersebut memiliki kekuatan tarik (*ultimate tensile strength*) yang lebih rendah dibanding logam lainnya. Dari Gambar 5, diperoleh perbandingan suhu maksimal gelembung dengan titik leleh logam, dimana ketiga ukuran gelembung dapat menghasilkan suhu yang tinggi dan melebihi titik leleh logam. Khusus untuk gelembung dengan ukuran 10 μm , suhu yang dapat dihasilkan melebihi titik leleh dari logam Tembaga. Konsekuensi dari suhu tinggi yang dihasilkan gelembung ini dapat menyebabkan kekuatan dari logam menjadi menurun akibat mengalami pemuaihan, bahkan hingga akhirnya meleleh pada bagian tertentu. Tentunya efek sonofisika ini akan jauh lebih lebih besar dan transfer panas menjadi lebih efektif jika jumlah gelembung semakin banyak, karena gelembung mikro tunggal hanya mengemisikan tekanan dan suhu tinggi pada permukaan dengan bagian kecil saja.



Gambar 5. Perbandingan T_{max} gelembung dengan titik leleh logam

4. Kesimpulan

Pada simulasi ini, diperoleh model yang menggambarkan dinamika gelembung mikro pada saat diberi gelombang ultrasonik dengan berbagai variasi jari-jari awal (R_0). Gelembung yang memiliki R_0 yang kecil memiliki siklus osilasi yang lebih intens dan menghasilkan efek sonofisika yang lebih besar, sehingga memiliki efektivitas yang lebih tinggi untuk mendeformasi lapisan logam.

Daftar Pustaka

1. M.P. Khairunnisa, F. Faizal, E. Miyazawa, K. Masuda, M. Tsukada, I.W. Lenggoro: Detachment of submicron particles from substrates using the suspension-assisted ultrasonic method. *Journal of Chemical Engineering of Japan* 54(4) (2021), 135–143.
2. B. Fajar, E. Widayati: Investigasi pengaruh kavitasi ultrasonik pada transesterifikasi biodiesel (skala lab) untuk pengembangan ultrasonik mobile reactor. *Prosiding SNST Fakultas Teknik* 1(1) (2011).
3. E. Stride, C. Coussios: Cavitation and contrast: the use of bubbles in ultrasound imaging and therapy. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H: Journal of Engineering in Medicine* 224(2) (2010), 171–191.
4. K.S. Suslick, D.J. Flannigan: Inside a collapsing bubble: sonoluminescence and the conditions during cavitation. *Annu. Rev. Phys. Chem.* 59 (2008), 659–683
5. L. Rayleigh: Viii. on the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 34(200) (1917), 94–98
6. M.S. Plesset: *The dynamics of cavitation bubbles* (1949)
7. X. Wang, Z. Ning, M. Lv, C. Sun: Machine learning for predicting the bubble-collapse strength as affected by physical conditions. *Results in Physics* 25 (2021), 104226
8. J.B. Keller, M. Miksis: Bubble oscillations of large amplitude. *The Journal of the Acoustical Society of America* 68(2) (1980), 628–633.

9. V.S. Moholkar: Mathematical models for sonochemical effects induced by hydrodynamic cavitation. *Handbook of Ultrasonics and Sonochemistry*. 9 Singapore: Springer Science (2015), 1–48.
10. G.E. Dieter, D.J. Bacon: *Mechanical Metallurgy* vol. 3. McGraw Hill (1976)
11. W.D. Callister Jr, D.G. Rethwisch: *Callister's Materials Science and Engineering*. John Wiley & Sons (2020).
12. P. Kumar, V. Moholkar: Numerical assessment of hydrodynamic cavitation reactors using organic solvents. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 50(8) (2011), 4769–4775.

PENGARUH CROSS-EQUATORIAL NORTHERLY SURGE TERHADAP KEJADIAN BANJIR DI JAKARTA (STUDI KASUS 31 DESEMBER 2019 - 1 JANUARI 2020)

BELLA PUSPITA DEWI *, SAYFUL AMRI

*Jurusan Klimatologi, Sekolah Tinggi Meteorologi Klimatologi dan Geofisika
Jl. Perhubungan I No.5 Pondok Betung, Bintaro, Kec. Pd. Aren, Kota Tangerang Selatan,
Banten 15221, Telp. 021-73691621*

*email : bellapuspitadewi30@gmail.com

Abstrak. Penelitian ini bertujuan untuk menganalisis pengaruh *Cross-Equatorial Northerly Surge* (CENS) yang diduga menjadi pemicu terjadinya hujan lebat dan menyebabkan banjir Jakarta 1 Januari 2020. Analisis yang digunakan dalam penelitian yaitu analisis deskriptif terhadap data pengamatan, reanalisis, dan citra satelit dengan menggunakan aplikasi SATAID. Fenomena CENS merupakan *Northerly Cold Surge* (NCS) yang mampu melintasi ekuator dan biasanya ditandai dengan adanya peningkatan *Mean Sea Level Pressure* (MSLP) di Siberia yaitu *Siberian High*, kecepatan angin meridional yang lebih dari 5 m/s di wilayah 105°BT hingga 115°BT. Hasil dari penelitian ini adalah CENS memicu penguatan angin Monsoon Asia, sehingga wilayah Jakarta mendapatkan suplai uap air yang besar dari Laut Cina Selatan (LCS) dan memicu terbentuknya sistem awan konvektif yang menyebabkan hujan lebat yang menjadi pemicu terjadinya banjir di wilayah Jakarta dan sekitarnya pada tanggal 1 Januari 2020.

Kata kunci: CENS, SATAID, MSLP, LCS, banjir Jakarta

Abstract. This study aims to analyze the impact of the Cross-Equatorial Northerly Surge (CENS), which is assumed to be the source of the severe rains when the flood occurred in Jakarta on January 1, 2020. This study analyzes observation, reanalysis, and Himawari-8 Satellite data by the SATAID tool. CENS is defined by the increase of MSLP in Siberia (Siberian High), speed of meridional wind more than 5m/s in the region of 105°E to 115°E, or Northerly Cold Surge that can cross the equator. These results show that CENS enhances the Asian monsoon winds, so the Jakarta area receives much moisture from the warm South China Sea. The condition causes the formation of a convective cloud system, which causes heavy rain and flooding in the Jakarta area on January 1, 2020.

Keywords: CENS, SATAID, MSLP, LCS, Flood in Jakarta

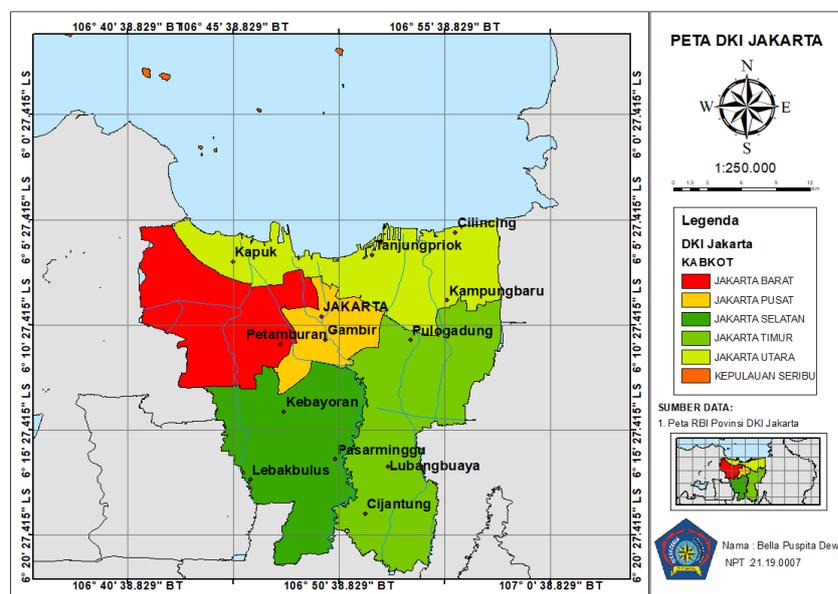
1. Pendahuluan

CENS atau *Cross-Equatorial Northerly Surge* adalah fenomena meteorologis berupa aliran angin permukaan yang berasal dari Laut Cina Selatan (LCS) dengan sangat kuat melintasi ekuator. CENS berkaitan erat dengan peningkatan rata-rata curah hujan di sebagian wilayah Indonesia (Hattori et al., 2011; Mori et al., 2016; Mori et al., 2018). Penguatan CENS dapat memperkuat aliran monsun musim dingin Asia yang berperan dalam pembentukan hujan di wilayah Indonesia selama periode musim hujan dari November hingga Maret (Yulihastin, 2014). Oleh karena itu, penguatan CENS berpotensi menyebabkan hujan yang persisten. Hal ini seperti yang terjadi pada tahun-tahun yang mencatatkan peristiwa banjir besar di Jabodetabek.

Berdasarkan data dari BMKG, hujan lebat yang terjadi pada tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020 merupakan hujan dengan curah hujan tertinggi selama pengukuran curah hujan Jakarta sejak tahun 1866. Hal ini menunjukkan bahwa kejadian tersebut merupakan hujan yang ekstrim. Perubahan iklim menjadi peluang terjadinya curah hujan ekstrim yang menjadi faktor penyebab banjir. Adapun berdasarkan data dari Badan Penanggulangan Bencana Daerah (BPBD) Provinsi Jakarta per 1 Januari 2020, terdapat 60% kelurahan terdampak banjir. Kelurahan yang paling terdampak banjir, diantaranya Jakarta Timur sebesar 77%, Jakarta Utara 74%, Jakarta Barat 57%, Jakarta Selatan 50% dan Jakarta Pusat 39%. Oleh karena itu, analisis pengaruh CENS terhadap kejadian banjir di Jakarta sangat penting dilakukan. Dalam penelitian ini, analisis citra satelit dilakukan dengan menggunakan aplikasi SATAID (*Satellite Animation and Interactive Diagnosis*). SATAID adalah aplikasi yang dikembangkan oleh *Satellite Meteorological Center (SMC) Japan Meteorological Agency (JMA)* untuk menganalisis citra satelit. Aplikasi SATAID banyak digunakan untuk mengidentifikasi dan menganalisis kondisi cuaca ekstrim, salah satunya digunakan untuk menganalisis kejadian banjir dan puting beliung yang terjadi di Jakarta dan Jogjakarta (Harsa dkk., 2011). Dengan pemanfaatan aplikasi SATAID ini, diharapkan dapat membantu dalam mengidentifikasi dan menganalisis CENS terkait dengan kejadian banjir di Jakarta pada tanggal 1 Januari 2020.

2. Metode Penelitian

Daerah penilitan ini mencakup Provinsi Jakarta yang terletak pada koordinat $5^{\circ}19'12''-6^{\circ}23'54''$ LS dan $106^{\circ}22'42''-106^{\circ}58'18''$ BT. Peta wilayah DKI Jakarta diperlihatkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Peta Wilayah Provinsi Jakarta

Data yang digunakan dalam penelitian ini adalah (1) data curah hujan pengamatan, (2) data reanalisis *Mean Sea Level Pressure*, dan (3) data citra satelit wilayah Provinsi Jakarta.

Data curah hujan pengamatan yang digunakan adalah data pengamatan dari Stasiun Meteorologi Kelas III Kemayoran, Jakarta Pusat, serta Stasiun Meteorologi Kelas I Maritim Tanjung Priok, Jakarta Utara. Data ini diperoleh dari *website* www.ogimet.com. Data ini dari tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020.

Data reanalisis yang digunakan adalah ERA-5. Data ini memiliki resolusi spasial sebesar $0.125^\circ \times 0.125^\circ$. Variabel data reanalisis yang digunakan pada penelitian ini adalah *Mean Sea Level Pressure* (MSLP), suhu permukaan (2 meter), pada lapisan 1000 hPa–850 hPa digunakan data kecepatan angin zonal (U), kecepatan angin meridional (V), dan kelembapan spesifik (q). Selain itu, juga digunakan data curah hujan harian. Data ini dapat diakses melalui *website* <https://cds.climate.copernicus.eu/>.

Data citra satelit yang digunakan dalam penelitian ini ialah data Himawari-8 dan GSMAP. Data Himawari-8 yang digunakan adalah band IR setiap 6 jam, sedangkan data GSMAP yang digunakan adalah data *NRT rain rate* setiap jam dari tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020.

Analisis dalam penelitian ini dibagi menjadi 3 bagian utama, yaitu (1) identifikasi CENS, (2) analisis transpor kelembapan, dan (3) analisis citra satelit. Identifikasi kejadian CENS dalam penelitian ini berdasarkan metode Hattori (2011), yaitu kecepatan angin utara lebih dari 5 m/s yang bertiup pada wilayah antara 105°BT hingga 115°BT . Selain itu, penelitian ini juga mengidentifikasi terlebih dahulu NCS karena hal ini merupakan prekursor dari fenomena CENS. NCS ditandai dengan meningkatnya tekanan di wilayah Siberia yang menyebabkan adanya aliran massa udara hingga selatan Asia dan terjadinya perbedaan tekanan antara Gushi dan Hongkong, yaitu >10 hPa yang menyebabkan penurunan suhu hingga 6°C di Hongkong.

Analisis transpor kelembapan dilakukan untuk mengetahui dampak CENS terhadap dinamika atmosfer di wilayah kajian. Analisis transpor kelembapan pada penelitian ini berdasarkan metode Zhou dan Yu (2005). Pada metode ini, transpor uap air dapat dianalisis melalui rumus, yaitu:

$$Q = \frac{1}{g} \int_{pt}^{ps} qV dp \tag{1}$$

Keterangan:

- Q = Transpor Uap Air (kg/m/s)
- g = Percepatan Gravitasi Bumi (m/s^2)
- ps = Tekanan Permukaan (1000 hPa)
- pt = Tekanan pada Level Atas (300 hPa)
- q = Kelembaban Spesifik (g/kg)
- V = Vektor Angin Zonal– Meridional
- dp = Perubahan Tekanan (hPa)

Analisis citra satelit dalam penelitian ini meliputi analisis sebaran sistem awan konvektif dan analisis distribusi curah hujan di wilayah kajian. Analisis sebaran sistem awan konvektif ini menggunakan aplikasi SATAID dengan metode RGB

Enhance infrared yang diperoleh dari *Japan Meteorological Agency* (JMA). Pada modul ini ketentuan intensitas warna yang digunakan mulai dari *Warm Medium Grey* (WMG) hingga *Cold Dark Grey* (CDG). Intensitas warna ditentukan berdasarkan radiasi *infrared*. Awan konvektif ditandai dengan warna yang ditunjukkan mulai dari *Dark Grey* (DG) hingga CDG.

Tabel 1. Legenda *Enhanced Infrared*

Nomor	Interval Warna	Interval Suhu Puncak Awan (°C)	Ringkasan
2	0-255	>9.0	<i>Warm Medium Grey</i> (WMG)
3	109-202	9.0 s.d -30	<i>Off White</i> (OW)
4	60-60	-31 s.d -41	<i>Dark Grey</i> (DG)
5	110-110	-42 s.d -53	<i>Medium Grey</i> (MG)
6	160-160	-54 s.d -63	<i>Light Grey</i> (LG)
7	0-0	-64 s.d -69	<i>Black</i> (B)
8	255-255	-70 s.d -75	<i>White</i> (W)
9	135-135	-76 s.d -80	<i>Cold Medium Grey</i> (CMG)
10	85-85	<-80	<i>Cold Dark Grey</i> (CDG)

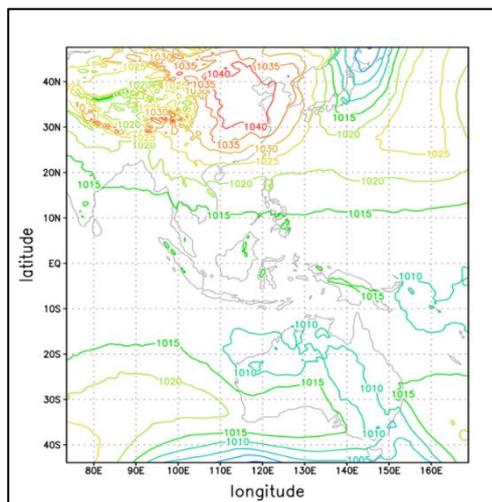
Analisis distribusi curah hujan menggunakan data stasiun dan GSMAP. Berdasarkan BMKG, hujan dapat digolongkan berdasarkan intensitas curah hujannya. Curah hujan 0.5 - 20 mm/hari tergolong hujan ringan, 20 - 50 mm/hari tergolong hujan sedang, 50 - 100 mm/hari tergolong hujan lebat, 100 - 150 mm/hari tergolong hujan sangat lebat, dan >150 mm/hari tergolong hujan ekstrem.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Identifikasi *Cold Surge*

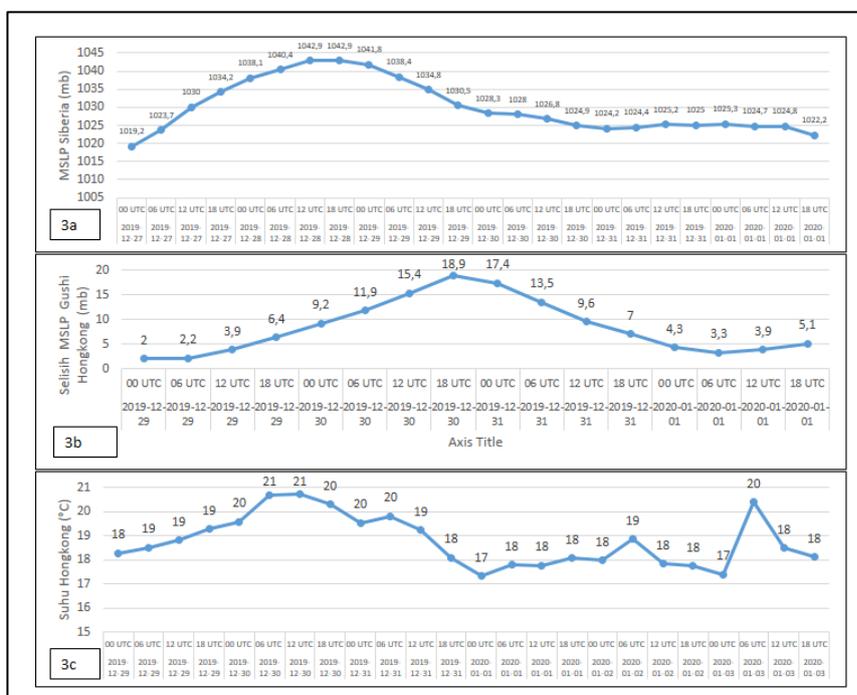
Fenomena CENS biasanya ditandai dengan adanya NCS, yang merupakan penjaralan massa udara dingin dari lintang tinggi ke wilayah ekuator. Fenomena ini biasanya ditandai dengan adanya peningkatan tekanan udara di wilayah dataran tinggi Tibet yang biasa dikenal sebagai *Siberian High*. Oleh karena itu, analisis MSLP dilakukan untuk mengidentifikasi prekursor dari fenomena NCS dan CENS. Gambar 2 menunjukkan pola MSLP pada 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 di wilayah Asia, LCS, hingga Indonesia. Berdasarkan gambar tersebut terdapat daerah bertekanan tinggi di daratan Asia, dengan nilai sebesar 1040 hPa. Hal ini menandakan adanya *Siberian High*, yang menjadi prekursor adanya NCS. Adanya perbedaan tekanan antara daratan Asia yang memiliki tekanan tinggi dan Australia dengan tekanan yang lebih rendah, sehingga kondisi tersebut mendukung penguatan aliran monsun Asia ke wilayah Indonesia.

Siberian High merupakan prekursor awal dari terjadinya NCS dan CENS-dan mulai terbentuk beberapa hari sebelum terjadinya CENS. Hal ini ditunjukkan pada gambar 3a, yaitu MSLP terbesarnya pada tanggal 28 Desember 2019, dengan nilai tekanan sebesar 1042,9 hPa.

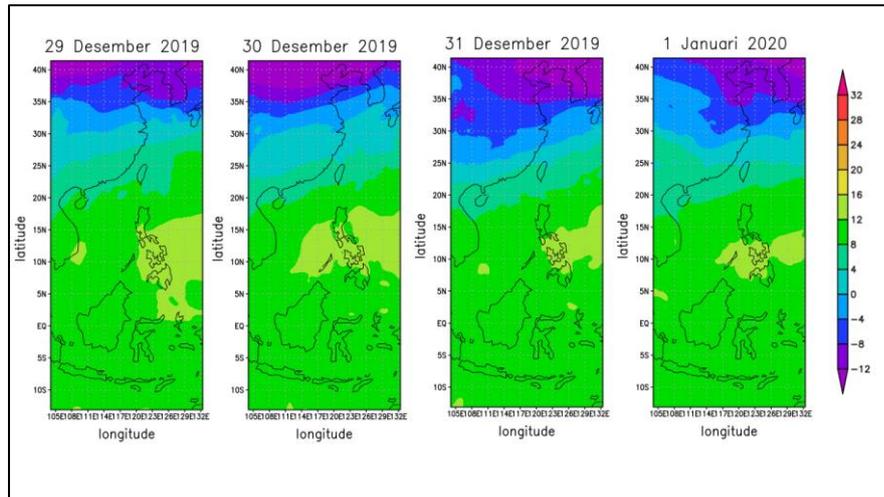


Gambar 2. Peta Isobar (MSLP) tanggal 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 (00 UTC)

Gambar 3b menunjukkan bahwa NCS mulai terbentuk pada tanggal 30 Desember 2019. Hal ini ditandai dengan perbedaan MSLP Gushi dan Hongkong lebih besar dari 10 hPa, yaitu 11,9 hPa. NCS juga merupakan prekursor dari CENS, sehingga NCS terjadi sebelum CENS. Hal ini terlihat dari gambar 3b, yaitu kejadian NCS berlangsung dari tanggal 30 hingga 31 Desember 2019. Kejadian tersebut juga ditandai dengan penurunan suhu di Hongkong mulai dari tanggal 30 Desember 2019, karena adanya pergerakan NCS menuju LCS. Namun, penurunan suhu tersebut kurang dari 6°C, yaitu hanya sekitar 3°C. Gambar 4 menunjukkan adanya penjarangan massa udara dingin dari wilayah Asia ke selatan hingga lintang 22°8’-22°35’LU.



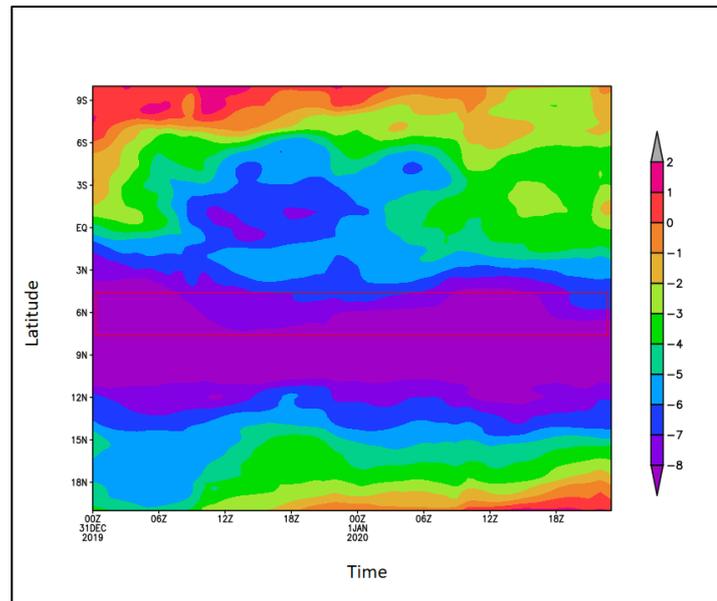
Gambar 3. Identifikasi NCS (3a) MSLP Siberia, (3b) Selisih MSLP Gushi-Hongkong, dan (3c) Suhu Hogkong



Gambar 4. Suhu Permukaan 29 Desember 2019 - 1 Januari 2020 (dalam °C)

3.2. Identifikasi CENS

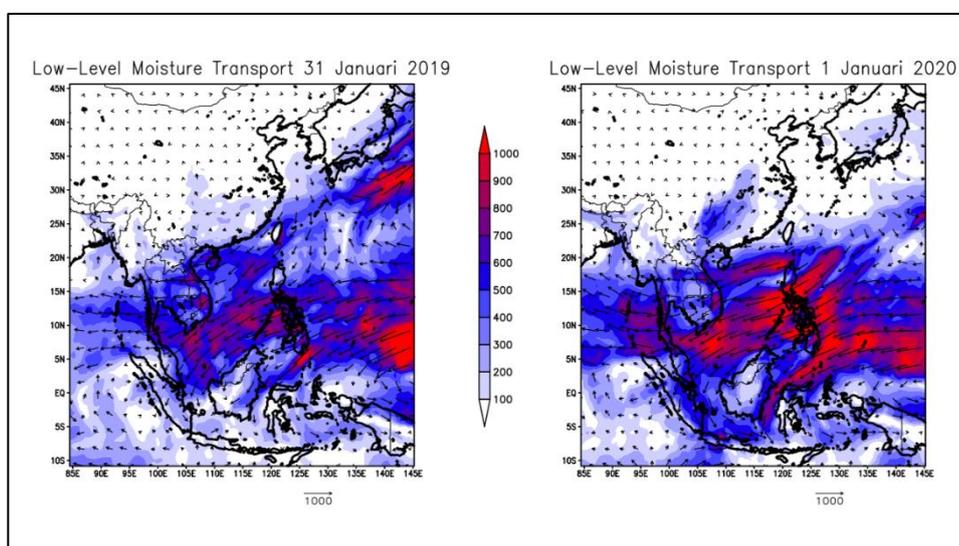
Identifikasi CENS dalam penelitian ini menggunakan metode Hattori, yaitu CENS terjadi saat kecepatan angin utara pada lapisan 925 hPa di wilayah antara 105°BT hingga 115°BT lebih dari 5 m/s atau kecepatan angin meridionalnya kurang dari -5 m/s. Oleh karena itu, dibuat diagram Hovmoller penampang lintang-waktu untuk rata-rata bujur 105° - 115°BT dari tanggal 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020. Gambar 5 menunjukkan bahwa kecepatan angin meridional di wilayah 105°-115°BT kurang dari -5 m/s, sehingga dapat disimpulkan pada tanggal 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 terjadi fenomena CENS.



Gambar 5. Diagram hovmoller angin meridional pada ketinggian 925 hPa 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 (dalam m/s)

3.3. Analisis Transpor Kelembapan

CENS sering meningkatkan curah hujan di wilayah Jabodetabek dan sekitarnya. Transpor kelembapan merupakan salah satu faktor yang paling dominan menjelaskan CENS dapat meningkatkan curah hujan di wilayah tersebut. Oleh karena itu, analisis transpor kelembapan dibuat dari tanggal 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 pada lapisan 1000 hPa - 850 hPa. Adanya CENS pada tanggal tersebut memicu penguatan aliran monsun timur laut Asia, sehingga wilayah Indonesia bagian barat, terutama Jabodetabek mendapatkan suplai uap air yang besar dari LCS (Gambar 6). Selain itu, penjaralan massa udara dingin (NCS) dari lintang tinggi ke wilayah ekuatorial, yang sifat massa udaranya kering bertemu dengan massa udara di LCS yang hangat memicu terbentuknya mekanisme *front* di wilayah LCS. Kondisi ini meningkatkan potensi terbentuknya awan-awan konvektif di wilayah yang dilaluinya dan pada saat aliran tersebut mampu melintasi ekuator (CENS), maka dampak yang ditimbulkan dapat mencapai wilayah di selatan ekuator, termasuk Jabodetabek.

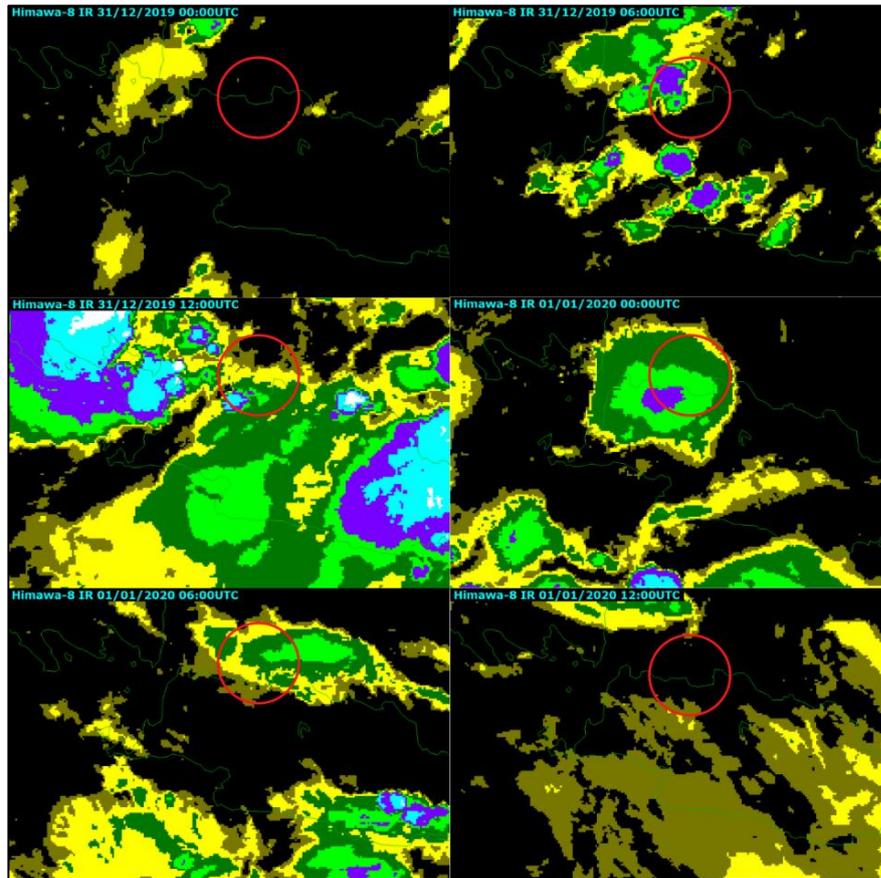


Gambar 6. Transpor Kelembapan 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020 (dalam kg/m/s)

3.4. Analisis Citra Satelit Himawari 8

Awan cumulonimbus (Cb) adalah jenis awan konvektif (menjulung tinggi) dengan bentuk bergumpal seperti bunga kol. Pada metode RGB *Enhance* infrared, awan konvektif ditandai dengan DG sampai CDG. Gambar 7 menunjukkan bahwa terdapat sebaran sistem awan konvektif di wilayah Jabodetabek dari tanggal 31 Januari 2019, yang memicu hujan sangat lebat yang menyebabkan banjir di wilayah Jakarta dan sekitarnya. Pada 31 Desember 2019 pukul 00 UTC, terlihat bahwa awan konvektif masih berada di Selat Sunda, Laut Jawa dan Jakarta. Tahap tumbuh awan dimulai saat pukul 06 UTC, terindikasi munculnya awan Cumulonimbus di Kepulauan Seribu dan beberapa wilayah di Jakarta. Tahap matang dari awan konvektif tersebut terlihat pada tanggal yang sama pukul 12 UTC, awan konvektif menutupi seluruh wilayah Jakarta, yang mengindikasikan bahwa hujan lebat terjadi di sebagian besar wilayah Jakarta. Selanjutnya, pada tanggal 1 Januari 2020 pukul

00 UTC, awan terlihat sedikit demi sedikit mulai menghilang yang mengindikasikan tahap disipasi awan.



Gambar 7. Skema Enhance infrared 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020

Menurut Tjasyono dan Sri (2012), terdapat tiga tahap pertumbuhan awan cumulonimbus, diantaranya tahap tumbuh, tahap dewasa, dan tahap disipasi. Oleh karena itu, penelitian ini menganalisis *time series* dari *Temperature Black Body* (TBB) yang mengindikasikan suhu puncak awan.

Gambar 8 menunjukkan grafik suhu puncak awan pada tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020. Pada tanggal 31 Desember fase tumbuh awan mulai pukul 07 UTC, hal ini terlihat dari adanya peningkatan suhu puncak awan hingga -60°C . Hal ini menunjukkan pertumbuhan awan konvektif dimulai dari jam 07 UTC hingga 14 UTC. Adapun fase matang pada jam 15 UTC hingga 23 UTC. Proses konvektif ini yang menjadi penyebab hujan lebat pada tanggal 31 Desember 2019. Proses ini mulai berakhir pada tanggal 1 Januari 2020. Pada proses ini awan telah mengalami fase disipasi. Hal ini ditandai dengan adanya kenaikan suhu puncak awan dari sekitar -65°C ke suhu yang lebih tinggi atau hangat.

Adanya penguatan aliran monsun Asia karena adanya CENS, sehingga memberikan suplai uap air yang besar di wilayah Jabodetabek, maka sistem awan konvektifnya sifatnya persisten. Hal ini ditunjukkan pada gambar, yaitu adanya penurunan suhu puncak awan yang baru setelah sistem awan konvektif lainnya sudah terdisipasi.

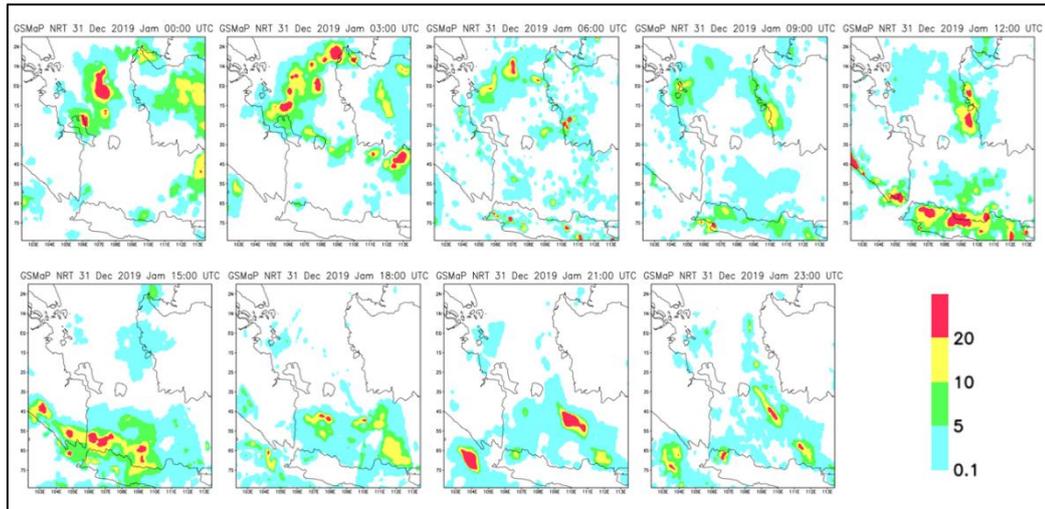


Gambar 8. Grafik Time Series Suhu Puncak Awan 31 Desember 2019 - 1 Januari 2020

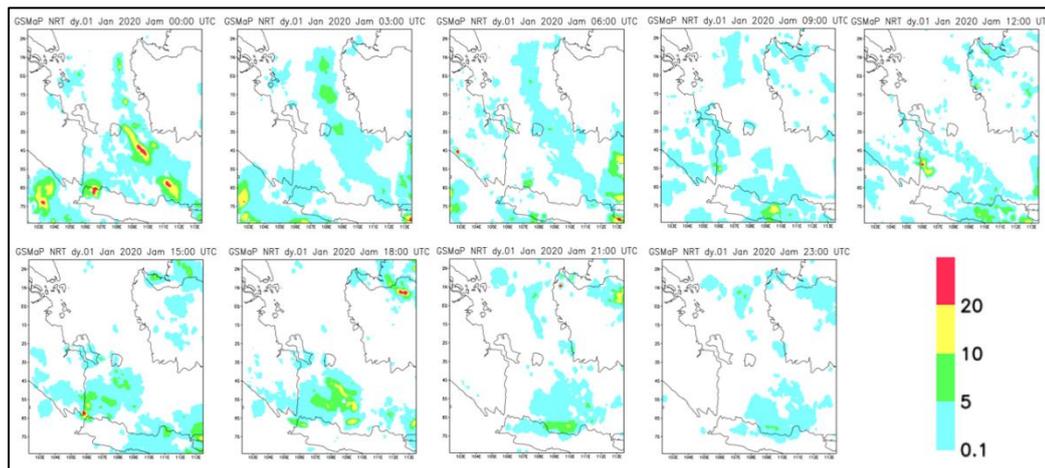
3.5. Analisis Curah Hujan

Gambar 9 dan 10 menunjukkan distribusi curah hujan spasial dari data satelit GSMAP dari tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020. Pada 31 Desember 2019, awalnya hujan dengan intensitas 0.1–10 mm/jam mengguyur wilayah Selat Sunda, Banten, dan beberapa wilayah di Jawa Barat. Hujan mulai mengguyur Jakarta dengan intensitas sebesar 0.1–20 mm/jam, yaitu pukul 09 UTC. Curah hujan lebat terjadi pada pukul 12 UTC dikarenakan intensitas hujannya diatas 20 mm/jam. Adanya pergerakan massa udara, memicu sistem awan konvektifnya bergeser ke wilayah lain, sehingga terjadi penurunan curah hujan di wilayah Jakarta pada pukul 18 UTC. Pada saat itu hujan hanya mengguyur Kepulauan Seribu dan beberapa daerah di Banten dan Selat Sunda.

Pada tanggal 1 Januari 2020, data radar dan satelit GSMaP menunjukkan adanya aktivitas konvektif yang menyebabkan terjadi hujan sedang di Jakarta dengan rata-rata intensitasnya 0.1–10 mm/jam. Berdasarkan gambar 10, pukul 03 UTC hingga 09 UTC telah terjadi hujan. Selanjutnya pukul 12 UTC, terdapat pergerakan aktivitas konvektif ke wilayah lain, sehingga terjadinya penurunan curah hujan di Jakarta. Namun, aktivitas konvektif terjadi yang menyebabkan hujan kembali mengguyur wilayah jakarta pada pukul 18 UTC hingga 23 UTC.

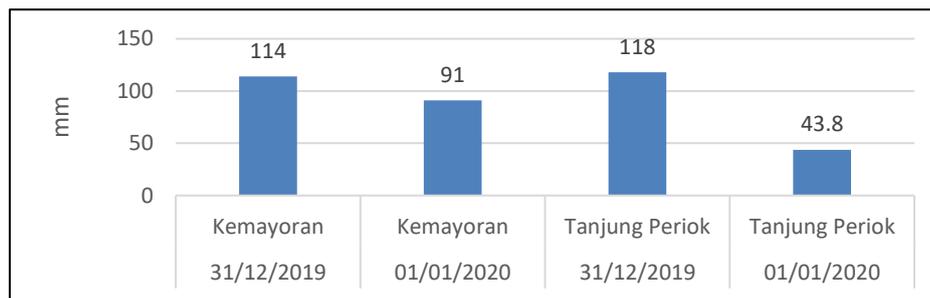


Gambar 9. Persebaran Curah Hujan 31 Desember 2019 (dalam mm/jam)



Gambar 10. Persebaran Curah Hujan 1 Januari 2020 (dalam mm/jam)

Berdasarkan data pengamatan dua stasiun, didapatkan bahwa pada stasiun Stasiun Meteorologi Kelas III Kemayoran, Jakarta Pusat, tercatat tanggal 31 Desember 2019, curah hujan bernilai sebesar 114 mm/hari (sangat lebat), sedangkan pada tanggal 1 Januari 2020 curah hujannya sebesar 91 mm/hari (lebat). Adapun curah hujan yang tercatat pada 31 Desember 2019 di Stasiun Meteorologi Kelas I Maritim Tanjung Priok, Jakarta Utara, yaitu sebesar 118.8mm/hari (sangat lebat), sedangkan pada tanggal 1 Januari 2020, nilainya sebesar 43.8 mm/hari (sedang). Dari data curah hujan stasiun tersebut menunjukkan bahwa pada tanggal 31 Desember 2019 hingga 1 Januari 2020, terjadi hujan dengan intensitas sedang hingga sangat lebat, sehingga memicu terjadinya banjir di wilayah Jakarta.



Gambar 11. Grafik Curah Hujan Harian 31 Desember 2019-1 Januari 2020 (dalam mm/hari)

4. Kesimpulan

Berdasarkan hasil dan pembahasan diperoleh kesimpulan bahwa pada tanggal 31 Desember 2019 sampai 1 Januari 2020 terjadi CENS yang diawali dengan adanya *Siberian High* dan NCS yang ditandai dengan peningkatan MSLP di wilayah Siberia dan penjaralan massa udara dingin dari Asia hingga wilayah Hongkong dan sekitarnya. CENS memicu penguatan aliran monsun timur laut Asia, sehingga wilayah di selatan ekuator termasuk Jakarta mendapatkan transpor kelembapan yang besar dari LCS dan meningkatkan potensi terbentuknya awan-awan konvektif yang memicu hujan sangat lebat dan menimbulkan banjir di wilayah Jakarta.

Daftar Pustaka

1. Shouting, G., Yushu, Z., Ting, L., & SUN, S., Analyses of hot and humid weather in Beijing city in summer and its dynamical identification. *Science in China Ser, D Earth Sciences*, Vol. 48 (2005), p128—137.
2. Hattori, M., Mori, S., Matsumoto, J., The Cross-Equatorial Northerly Surge over the Maritime Continent and Its Relationship to Precipitation Patterns, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, Vol. 89A (2011), p27- 47.
3. Yulihastin, E., & Trilaksono, N. J., Evolution Of Heavy Rainfall In Jakarta Evolution Of Heavy Rainfall In Jakarta, (2014), p167-173.
4. Fatkhuroyan, & Taryono., Dampak Seruak Dingin Monsun Dingin Asia Terhadap Variabilitas Hujan Di Jawa, *Prosiding Snfa (Seminar Nasional Fisika Dan Aplikasinya)* (2020), p207-215.
5. Harsa, H., Linarka, U. A., & Kurniawan, R., Pemanfaatan Sataid Untuk Analisa Banjir Dan Angin Puting Beliung: Studi Kasus Jakarta Dan Yogyakarta, *Jurnal Meteorologi Dan Geofisika*, Vo. 12 No.2 (2011), p195-205.
6. Vahada, A. D., Identifikasi Overshooting Cloud Top Pada Awan Cumulonimbus Di Wilayah Tropis Menggunakan Satelit Himawari-8, *Seminar Nasional Mitigasi Dan Strategi Adaptasi Dampak Perubahan Iklim Di Indonesia*, p26-32.
7. Kharisma, S., & Widomurti, L., Analisis Hujan Lebat Dengan Menggunakan Data Citra Satelit Di Kabupaten Banjarnegara (Studi Kasus 18 Juni 2016), *Jurnal Material Dan Energi Indonesia*, Vol.8 No.1 (2018), p29 – 35.
8. Prakoso, A., & Kristanto, A., Kajian Gangguan Cuaca Pada Kejadian Hujan Lebat Di Batam (Studi Kasus Tanggal 19 Desember 2014), *Jurnal Meteorologi Klimatologi Dan Geofisika*, Vol.3 No.2 (2016), p1-8.

9. Yulihastin, E., & Fathrio, I., Interaction Between Cens-Mjo Transition Phase Affect To Diurnal Anomaly Of The Rainfall Over West Java, The 4 International Symposium For Sustainable Humanosphere (Issh) A Forum Of Humanosphere Science School (Hss), (2014), p.16-20.
10. Yulihastin, E., Hadi, T. W., & Syahputra, M. R., Mode Of Wind And Sea Surface Temperature Over The South China Sea During Rainy Season In Indonesia, IOP Conf. Series: Earth And Environmental Science 7, Vol.789 (2021), p1-8.
11. Ambinari Rachmi Putri, V. H., Evolusi Awan Cumulonimbus Saat Hujan Lebat Berbasis Citra Satelit Cuaca Dan Stabilitas Atmosfer (Studi Kasus Longsor Banjarnegara), Seminar Nasional Penginderaan Jauh Ke-5 , (2018), p729-737.
12. Tjasyono HK, Bayong dan Sri Woro B. Harijono., Meteorologi Indonesia Volume II Awan dan Hujan Monsun, (2012), Jakarta: Badan Meteorologi Klimatologi dan Geofisika.
13. I. J. A. Saragih, A. K., Kajian Dinamika Atmosfer Saat Kejadian Hujan Lebat Di Wilayah Pesisir Timur., Unnes Physics Journal, Vol.6 No.1 (2017), p25-30.
14. Mochammad Donny Anggoro, B. P., Kajian Waktu Hidup Dan Pergerakan Awan Konvektif Berbasis Citra Radar Dan Model Ecmwf, Jurnal Meteorologi Klimatologi Dan Geofisika, Vol.4 No.3 (2017), p24-31.
15. Paski, J. A., Sepriando, A., Sakya, A. E., Handayani, A. S., Pertiwi, D. A., & Noviati, S., Identifikasi Northerly Cold Surge (Ncs) Memanfaatkan Numerical Weather Prediction (Nwp) Dan Teknik Rgb Airmass Pada Satelit Himawari-8. Conference Paper, (2017).
16. Prasetyo, S., Kurniawan, W., & Rumahorbo, I. R., Synoptic And Mesoscale Analysis Of Extreme Synoptic And Mesoscale Analysis Of Extreme Station, Indonesia On December 7, 2018, Jiif (Jurnal Ilmu Dan Inovasi Fisika), Vol.5 No.2 (2021), p121-131.
17. Pujiastuti, T. T., & Nurjaman., Peranan Cross Equatorial Northerly Surge Terhadap Dinamika Atmosfer Di Wilayah Indonesia Bagian Barat, Jurnal Sains & Teknologi Modifikasi Cuaca, Vol.20 No.1 (2019), p1-11.
18. Qordowi, W., Analisis Kondisi Atmosfer Terkait Kejadian Banjirmenggunakan Data Radiosonde Dan Citra Satelit Himawari-8 (Studi Kasus : Sungailiat, Kabupaten Bangka Tanggal 12 Februari 2018), Prosiding Snfa (Seminar Nasional Fisika Dan Aplikasinya), (2018), p277-286.
19. Quina Alfa Hidayah, A. K., Identifikasi Karakteristik Awan Penyebab Hujan Lebat Pada Musim Kemarau Dan Musim Hujan Di Jambi (Studi Kasus : Juni Dan November 2017), Prosiding Seminar Nasional Geotik, (2019), p85-195.
20. Rekapitulasi Data Banjir Jakarta Dan Penanggulangannya Tahun 2020, Diambil Kembali Dari Portal Statistik Sektoral: <https://Statistik.Jakarta.Go.Id/>, (2020).
21. Probabilistik Curah Hujan 20 mm (tiap 24 jam), Diambil kembali dari BADAN METEOROLOGI, KLIMATOLOGI, DAN GEOFISIKA: <https://www.bmkg.go.id/cuaca/probabilistik-curah-hujan.bmkg>

ANALISIS MORFOLOGI DAN STRUKTUR KARBON AKTIF KULIT SALAK WEDI DENGAN AKTIVATOR BERTINGKAT

APRILLIA DWI ARDIANTI ^{1,*}, PELANGI EKA YUWITA ¹, M. IVAN ARIFUL FATHONI ²

¹ Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Nahdlatul Ulama Sunan Giri
Jl. Jendral Ahmad Yani No.10, Jamban, Sukorejo 52115, Bojonegoro, Jawa Timur

² Prodi Pendidikan Matematika, Fakultas Keguruan dan Ilmu Pendidikan, Universitas Nahdlatul Ulama Sunan Giri
Jl. Jendral Ahmad Yani No.10, Jamban, Sukorejo 52115, Bojonegoro, Jawa Timur

*email : aprilliadwia@unugiri.ac.id

Abstrak. Karbon aktif merupakan bahan material yang berpotensi untuk dijadikan elektroda pada superkapasitor karena memiliki densitas energi yang lebih tinggi daripada baterai dan sel bahan bakar serta densitas daya yang lebih tinggi daripada kapasitor konvensional. Telah ada penelitian sebelumnya membuat karbon aktif dari tempurung kelapa dengan aktivator $ZnCl_2$ menghasilkan karbon aktif dengan hasil luas permukaan spesifik yang besar dalam pembuatan elektroda superkapasitor. Penelitian ini dilakukan dengan menggunakan karbon aktif dari kulit salak wedi dengan variasi aktivator bertingkat $ZnCl_2$ dan KOH. Karakteristik sifat fisis karbon aktif kulit salak wedi dianalisis menggunakan Scanning Electron Microscope (SEM) untuk melihat morfologi serbuk karbon aktif kulit salak. Pengujian menggunakan Difraksi sinar-X (XRD) untuk melihat struktur karbon aktif kulit salak yang berpotensi untuk dijadikan elektroda pada superkapasitor.

Kata kunci: Karbon aktif, Salak, Aktivasi $ZnCl_2$ dan KOH

Abstract. Activated carbon is a material that has the potential to be used as electrodes in supercapacitors because it has a higher energy density than batteries and fuel cells and a higher power density than conventional capacitors. There have been previous studies making activated carbon from coconut shells with $ZnCl_2$ activator to produce activated carbon with large specific surface area results in the manufacture of supercapacitor electrodes. This research was carried out using activated carbon from the bark of salak wedi with a variety of graded activators $ZnCl_2$ and KOH. The physical characteristics of the activated carbon of the bark of the salak wedi were analyzed using a Scanning Electron Microscope (SEM) to see the morphology of the powder of activated carbon of the bark of the salak. Tests using X-Ray Diffraction (XRD) to see the structure of the bark activated carbon which has the potential to be used as electrodes in supercapacitors. *keywords:* concise and factual, purpose, principal results, no references, major conclusions.

Keywords: Activated carbon, Salak, Activation of $ZnCl_2$ and KOH

1. Pendahuluan

Superkapasitor merupakan perangkat penyimpanan energi listrik yang memiliki karakteristik diantaranya adalah waktu hidup yang lebih lama (bila dibandingkan dengan baterai), prinsip dan modelnya yang sederhana, waktu pengisian yang pendek, memiliki rapat daya yang tinggi, aman karena tidak mengandung bahan korosif dan lebih sedikit bahan yang beracun[1]. Superkapasitor dapat memberikan setidaknya 1000 kali lebih banyak energi daripada kapasitor dielektrik dan 10 kali

lebih banyak daya dari baterai dan superkapasitor memiliki siklus hidup yang lama yaitu lebih dari 500000 siklus [2]. Karbon aktif merupakan salah satu jenis bahan yang secara luas telah digunakan karena memiliki luas permukaan yang tinggi, ketahanan kimia, konduktivitas listrik yang baik dan harga yang terjangkau[3]. Karbon aktif merupakan sebuah bahan yang mengandung karbon bebas cukup besar, dimana karbon bebas tersebut memiliki daya serap yang tinggi dan memiliki pori yang meningkatkan daya serapnya karena mengalami reaksi dengan bahan kimia sebelum atau sesudah karbonisasi [4].

Banyak penelitian tentang karbon aktif yang telah dilakukan sebelum ini. Penelitian studi awal pengaruh suhu dan Konsentrasi pada proses aktivasi karbon dari kayu halaban menggunakan $ZnCl_2$ dan KOH telah dilakukan oleh Amanah dengan hasil efisiensi penyerapan dari kedua activator yang terbesar adalah $ZnCl_2$ dengan nilai 95,1 % dan KOH sebesar 93,3 % [5]. Pembuatan karbon aktif dari tempurung kelapa untuk menurunkan kadar ammonia dengan activator KOH, NaCl dan HCl dilakukan oleh Nisa Nurhidayanti[6]. Penelitian variasi holding time suhu aktivasi karbon aktif dari tempurung kluwak sebagai elektroda pada superkapasitor menghasilkan semakin lama waktu penahanan maka ukuran pori semakin kecil, luas permukaan semakin besar dan kapasitansi semakin besar [7]. Analisis perbedaan bahan aktivator dalam pembuatan elektroda superkapasitor dari arang tempurung kelapa mendapatkan hasil peningkatan nilai kapasitansi spesifik dengan aktivasi kimia menggunakan aktivator KOH [8].

Salak merupakan buah yang memiliki bentuk menyerupai telur. Kulit buah berwarna coklat dan tampak seperti kulit ular. Salak berisi tiga potong biji ditutupi dengan daging putih. Di Indonesia ada banyak kultivar salak, namun sebagian besar dari mereka memiliki rasa sepat. Kulit buah ditutupi dengan sisik yang teratur, memberikan penampilan kulit reptil. Bagian yang dapat dimakan adalah daging putih yang aromatik dan tembus pandang, rasanya mirip campuran nanas dan pisang. Masing-masing buah mengandung 1 sampai 3 biji berwarna coklat gelap. Daging buahnya dapat dimakan dan terdiri dari tiga lobus[9]. Setelah dikupas, kulitnya menjadi limbah dan dalam penelitian ini digunakan sebagai bahan baku pembuatan karbon aktif.

Faktor yang mempengaruhi besarnya penyerapan suatu karbon aktif adalah luas permukaan. Berbagai cara dapat digunakan untuk meningkatkan luas permukaan karbon aktif. Salah satu cara yang sering digunakan adalah dengan penggunaan aktivator. Selain itu struktur karbon aktif juga menentukan luas permukaan karbon aktif. Struktur karbon aktif pada dasarnya berbentuk amorf. Dengan perlakuan aktivasi pada karbon juga dapat meningkatkan kristalinitas dari karbon aktif. Kristalinitas pada karbon aktif mempengaruhi luas permukaan. Dengan keteraturan pada struktur kristal dan berukuran nano membuat luas permukaan semakin lebar. Berdasarkan referensi penelitian sebelumnya, peneliti ingin melakukan penelitian dengan beberapa perlakuan aktivasi pada karbon kulit salak dan menentukan morfologi serta struktur pada karbon aktif yang berpotensi untuk dijadikan elektroda pada superkapasitor. Aktivator yang digunakan pada penelitian ini adalah $ZnCl_2$ dan KOH.

2. Metode Penelitian

Prosedur pembuatan sampel

Biomassa yang digunakan dalam penelitian ini adalah limbah kulit salak wedi. Bahan baku kulit salak dibersihkan dengan air hingga bersih kemudian dikeringkan dalam oven dengan suhu 110°C untuk menghilangkan kadar air dalam pencucian.

Prosedur Karbonasi

Kulit salak dikarbonasi dalam furnace yang dialiri gas inert pada suhu 500C selama kurang lebih 1 jam yang bertujuan untuk menghilangkan zat-zat volatile pada kulit salak. Lalu arang kulit salak tersebut didiamkan hingga dingin dalam desikator. Setelah itu arang kulit salak yang dihasilkan digerus dan diayak lolos dengan ayakan 100 mesh dan tertahan pada ayakan 200 mesh hingga dihasilkan serbuk karbon. [10].

Proses Aktivasi Arang Aktif Kulit Salak

Serbuk karbon yang dihasilkan kemudian dicampurkan dengan padatan aktivator dengan massa perbandingan rasio massa serbuk karbon dan aktivator 1:4. Padatan aktivator dilarutkan dengan air distilasi hingga konsentrasi 20%. Serbuk karbon kemudian dicampurkan ke dalam larutan dan di shaker selama 20 jam dengan magnetic stirrer. Serbuk karbon yang telah diaktivasi kemudian dikeringkan dengan oven dan selanjutnya dicuci dengan air distilasi dan larutan HCl encer hingga diperoleh PH air pencucian mencapai 6-7[10] . Serbuk karbon yang telah dicuci kemudian dikeringkan kembali di dalam oven. Adapun tahap aktivasinya adalah dilakukan aktivasi kimia menggunakan aktivator $ZnCl_2$ dan KOH, setelah itu dilakukan aktivasi bertingkat yaitu: karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) dan karbon $KOH + ZnCl_2$ (s). Sehingga dengan dilakukannya aktivasi bertingkat, maka akan diperoleh 4 variasi sampel, yaitu: $ZnCl_2$, KOH, karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) dan karbon $KOH + ZnCl_2$ (s) [8].

Pengujian Sampel

Setelah itu sampel yang diperoleh di uji karakterisasi sifat fisis karbon aktifnya menggunakan scanning electron microscope. Karakterisasi scanning electron microscope dilakukan untuk mengetahui morfologi permukaan pada karbon kulit salak dengan melihat distribusi porinya. Pengujian scanning electron microscope dilakukan dengan empat perbesaran yaitu 500X, 1000X, 5000X dan 10.000X. Serta dilakukan pengujian menggunakan XRD untuk melihat struktur karbon aktif kulit salak yang berpotensi untuk dijadikan elektroda pada superkapasitor.

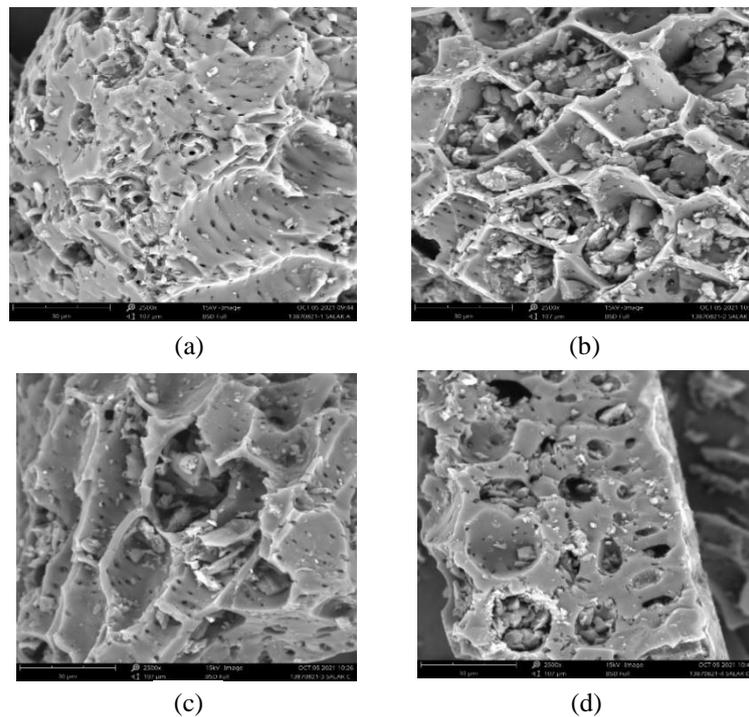
3. Hasil dan Pembahasan

Hasil Pengujian SEM

Pembentukan pori pada karbon aktif kulit salak ditunjukkan oleh morfologi permukaan karbon aktif hasil Scanning Electron Microscope (SEM) yang ditunjukkan pada Gambar 1 dengan perbesaran 2500 kali.

Pada Gambar 1(a) sampel karbon kulit salak dengan aktivasi KOH memperlihatkan sudah terbentuknya pori yang merata dengan jumlah yang banyak pada permukaan sampel. Pada Gambar 1(b) sampel karbon kulit salak dengan aktivasi $ZnCl_2$

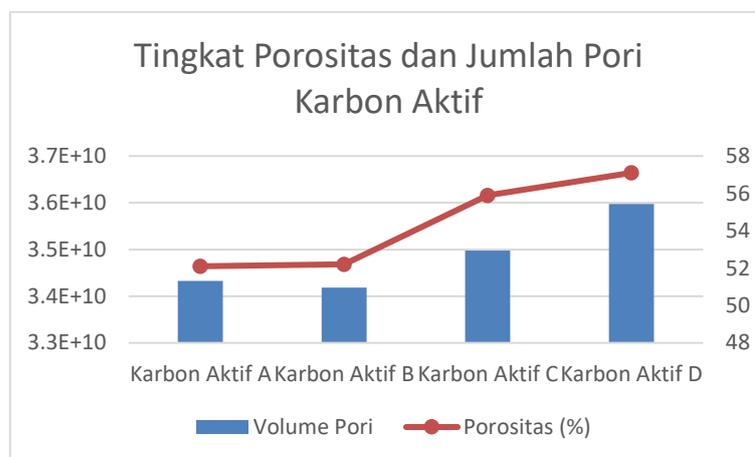
menunjukkan terbentuk pori namun permukaannya cenderung bersekat-sekat dan jumlah pori tertutup lebih banyak di bandingkan dengan aktivator KOH. Hal ini dikarenakan dengan menggunakan aktivator $ZnCl_2$ dapat membentuk fasa ZnO didalamnya. Untuk hasil SEM dari aktivator bertingkat Karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) ditunjukkan pada Gambar 1(c). Morfologi permukaan sampel memperlihatkan terbentuknya pori lebih banyak dibandingkan aktivasi sebelumnya, namun tetap terlihat ada beberapa permukaan yang masih tertutup dan bersekat-sekat. Sedangkan pada Gambar 1(d) memperlihatkan hasil SEM dari permukaan karbon aktif kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $KOH + ZnCl_2$ (s), dimana terlihat pori yang terbentuk belum terdistribusi secara merata namun memiliki jumlah pori paling banyak dibanding dengan variasi aktivator lainnya. Dari hasil SEM menunjukkan ukuran pori dalam skala nano.



Gambar 1. Gambar 1. Hasil SEM. (a) karbon kulit salak dengan aktivasi KOH (b) karbon kulit salak dengan aktivasi $ZnCl_2$ (c) karbon kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) (d) karbon kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $KOH + ZnCl_2$ (s)

Pada Gambar 2 memperlihatkan grafik hubungan sampel karbon aktif dengan tingkat porositas dan jumlah pori. Berdasarkan grafik ini terlihat bahwa dengan variasi aktivator bertingkat mempunyai volume pori dan tingkat porositas yang semakin besar, dimana volume pori pada sampel karbon aktif dengan aktivator bertingkat Karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) dan karbon aktif dengan aktivator bertingkat Karbon $KOH + ZnCl_2$ (s) masing-masing mempunyai volume pori $34.974.467.360 \text{ nm}^3$ dan $35.976.798.714 \text{ nm}^3$. Dengan adanya variasi bertingkat pada aktivator maka semakin banyak zat hidrokarbon atau zat pengotor yang terangkut sehingga akan meningkatkan volume pori karbon aktif. Peningkatan volume pori ini akibat dari terlarutnya pengotor-pengotor yang mengisi sistem pori bahan pada saat proses aktivasi sebanyak 2x (bertingkat). Selain itu proses aktivasi karbon aktif dengan

asam berfungsi untuk melarutkan impuritas-impuritas yang timbul selama proses karbonisasi yang menutupi sistem pori karbonaktif [13].



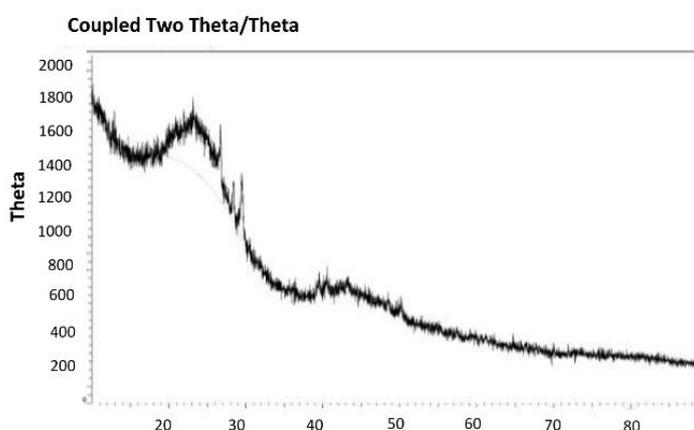
Gambar 2. Grafik tingkat porositas dan jumlah pori Karbon Aktif Kulit Salak

Dengan semakin besarnya nilai volume pori, maka porositas dari karbon aktif yang diaktivasi bertingkat juga semakin tinggi. Hal ini dapat dilihat dengan aktivator bertingkat Karbon $ZnCl_2 + KOH$ (s) dan karbon aktif dengan aktivator bertingkat Karbon $KOH + ZnCl_2$ (s) mempunyai tingkat porositas 55,9% dan 57,1% yang mempunyai nilai lebih besar jika dibandingkan dengan aktivasi satu kali.

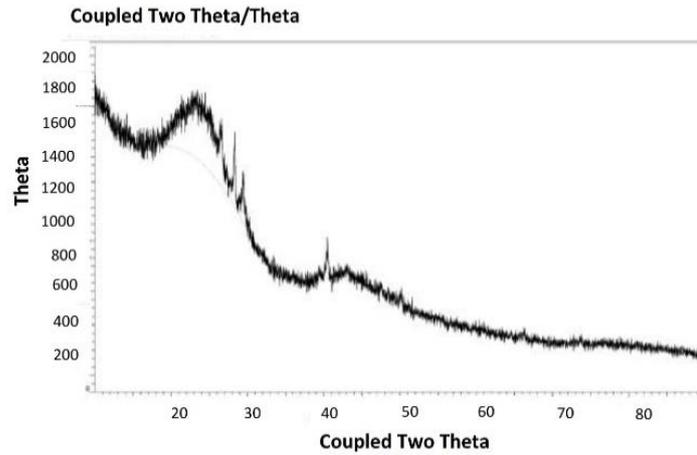
Hasil SEM dengan aktivasi bertingkat memiliki pori yang lebih banyak dibandingkan dengan sampel karbon aktif kulit salak yang diaktivasi sekali. Namun untuk distribusi pori dari keempat sampel ini masih kurang merata. Hal ini mungkin dikarenakan pada saat proses karbonisasi tidak dialiri gas Nitrogen yang juga mempengaruhi distribusi pori pada permukaan karbon aktif kulit salak yang tidak merata [12].

Hasil Pengujian XRD

Pola difraksi XRD sampel serbuk karbon kulit salak yang diaktivasi satu kali dengan KOH dan $ZnCl_2$ ditunjukkan pada Gambar 3.

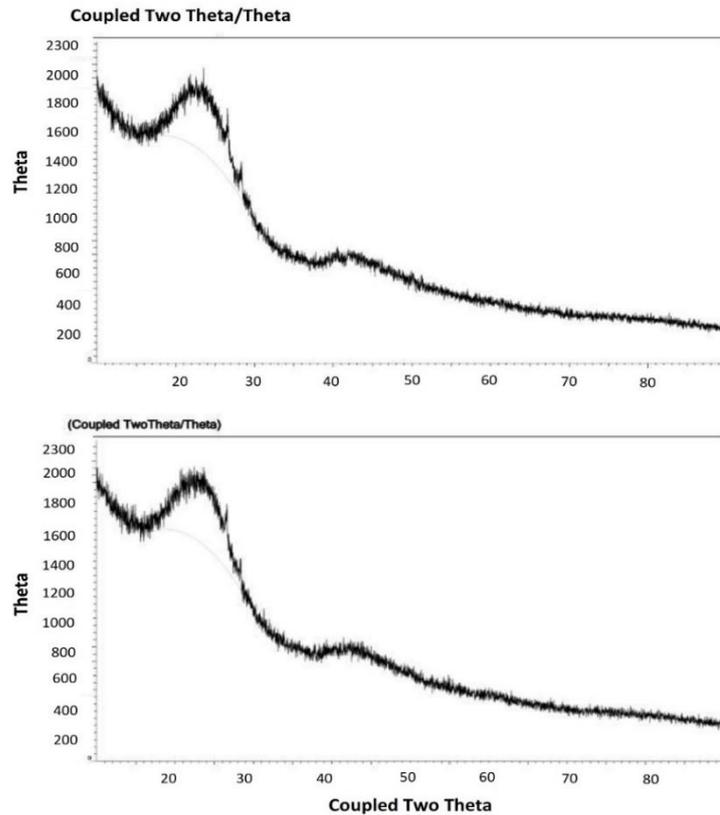


Gambar 3. Hasil XRD karbon kulit salak dengan aktivasi KOH



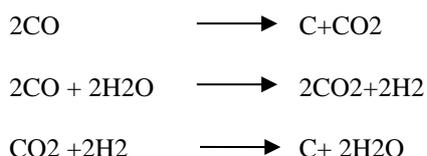
Gambar 4. Hasil XRD karbon kulit salak dengan aktivasi ZnCl_2

Gambar 3 menunjukkan pola XRD sampel serbuk karbon kulit salak yang diaktivasi dengan ZnCl_2 , sedangkan Gambar 4 menunjukkan pola XRD sampel serbuk karbon kulit salak yang diaktivasi dengan KOH. Pola difraksi XRD sampel serbuk karbon kulit salak yang diaktivasi bertingkat karbon $\text{ZnCl}_2 + \text{KOH}$ (s) dan karbon $\text{KOH} + \text{ZnCl}_2$ (s) ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 1. Hasil XRD. (a) karbon kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $\text{ZnCl}_2 + \text{KOH}$ (s) (b) karbon kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $\text{KOH} + \text{ZnCl}_2$ (s)

Pada gambar 4(c) menunjukkan pola XRD sampel karbon kulit salak dengan aktivator bertingkat Karbon $ZnCl_2 + KOH(s)$ sedangkan pada gambar 4(d) menunjukkan pola XRD sampel karbon kulit salak yang diaktivasi bertingkat yaitu diaktivasi dengan $KOH + ZnCl_2 (s)$. Dari semua hasil difraksi XRD serbuk karbon kulit salak menunjukkan terbentuk struktur amorf dengan puncak yang melebar dan meningkat. Meningkatnya puncak difraksi ini mengindikasikan bahwa derajat kristalinitas sampel serbuk karbon kulit salak semakin tinggi pula. Peristiwa peningkatan derajat kristalinitas pada sampel serbuk karbon kulit salak ini serupa dengan sampel grafit yang merupakan unsur utama pembentuk karbon aktif, reaksi yang memungkinkan dalam pembentukan grafit adalah sebagai berikut :



Nilai intensitas XRD ini dipengaruhi oleh tingkat kristalinitas bahan, yang disini adalah kulit salak wedi. Dimana semakin tinggi intensitasnya maka semakin kristalin bahan tersebut. Ketika suatu bahan berstruktur kristalin, maka susunan atomnya akan lebih teratur dan rapi. Hal inilah yang mempengaruhi sifat bahan itu sendiri, termasuk sifat listriknya. Saat susunan atom menjadi lebih rapi, elektron akan lebih cepat mengalir dalam bahan tersebut dan membuat bahan memiliki sifat konduktivitas yang lebih baik[12].

4. Kesimpulan

Dari penelitian ini di dapatkan hasil pada aktivasi bertingkat mempunyai jumlah pori dan tingkat porositas yang lebih besar jika dibandingkan dengan aktivasi yang hanya dilakukan satu kali, dengan hasil volume pori terbesar dengan aktivator bertingkat Karbon $KOH + ZnCl_2 (s)$ yaitu sebanyak $35.976.798.714 \text{ nm}^3$. Selain itu pada hasil analisis XRD mengindikasikan karbon aktif dari kulit salak termasuk bahan yang memiliki sifat konduktivitas yang baik karena mempunyai struktur kristalin dimana susunan atomnya lebih teratur dan rapi.

Ucapan Terima Kasih

Kami berterimakasih kepada DRPM Kemenristek Dikti yang telah mendanai riset ini. Penelitian ini masuk kedalam skema Hibah Penelitian Dosen Pemula Tahun Anggaran 2021.

Daftar Pustaka

1. V. N. Fitriana, "Sintesis Dan Karakterisasi Supercapacitor Berbasis Nanokomposit TiO_2/C ," 2014.
2. Y. Zhou, M. Fan, L. Chen, And J. Zhuang, "Lignocellulosic Fibre Mediated Rubber Composites: An Overview," *Composites Part B: Engineering*, Vol. 76, Pp. 180–191, 2015.
3. B. Mardwianta And S. T. T. Adisutjipto, "Pembangkitan Energi Listrik Pada Baterai Udara Dengan Bahan Karbon Aktif Dan Elektrolit Air Laut," 2017.

4. H. M. Waluyo, I. D. Faryuni, And A. Muid, "Analisis Pengaruh Ukuran Pori Terhadap Sifat Listrik Karbon Aktif Dari Limbah Tandan Sawit Pada Prototipe Baterai," *Jurnal Fisika Flux: Jurnal Ilmiah Fisika Fmipa Universitas Lambung Mangkurat*, Vol. 14, No. 1, Pp. 27–33, 2017.
5. A. N. Permata, R. R. A. P. Permatasari, And A. Takwanto, "Studi Awal Pengaruh Suhu Dan Konsentrasi Pada Proses Aktivasi Karbon Dari Kayu Halaban Menggunakan $ZnCl_2$ Dan Koh," *Distilat: Jurnal Teknologi Separasi*, Vol. 5, No. 2, Pp. 141–146, 2019.
6. N. Nurhidayanti, "Pemanfaatan Karbon Aktif Dari Tempurung Kelapa Dalam Menurunkan Kadar Amonia Total Dalam Air Limbah Industri," *Pelita Teknologi*, Vol. 15, No. 1, Pp. 68–76, 2020.
7. M. D. Habibah, "Variasi Holding Time Suhu Aktivasi Karbon Aktif Dari Tempurung Kluwak (Pangium Edule) Sebagai Elektroda Pada Superkapasitor," *Inovasi Fisika Indonesia*, Vol. 5, No. 1, 2016.
8. F. Susanti, E. Taer, And Others, "Analisis Perbedaan Bahan Aktivator Dalam Pembuatan Elektroda Superkapasitor Dari Arang Tempurung Kelapa".
9. A. Deininger And Others, "Challenges To Organic Farming And Sustainable Land Use In The Tropics And Subtropics, University Of Kassell-Witzenhausen, Germany, 9-11 October 2002.," *Challenges To Organic Farming And Sustainable Land Use In The Tropics And Subtropics, University Of Kassell-Witzenhausen, Germany, 9-11 October 2002.*, 2002.
10. N. Bagheri And J. Abedi, "Preparation Of High Surface Area Activated Carbon From Corn By Chemical Activation Using Potassium Hydroxide," *Chemical Engineering Research And Design*, Vol. 87, No. 8, Pp. 1059–1064, 2009.
11. Nurdiansah, Haniffudin., "Pengaruh Variasi Temperatur Karbonisasi Dan Temperatur Aktivasi Fisika Dari Elektroda Karbon Aktif Tempurung Kelapa Dan Tempurung Kluwak Terhadap Nilai Kapasitansi Electric Double Layer Capacitor (Edlc)". Jurusan Teknik Material Dan Metalurgi, Institut Teknologi Surabaya (2013).
12. R. F. Suwandana and D. Susanti, "Analisis Pengaruh Massa Reduktor Zinc terhadap Sifat Kapasitif Superkapasitor Material Graphene," *Jurnal Teknik ITS*, vol. 4, no. 1, pp. F95–F100, 2015.
13. S. Karthikeyan and P. Sivakumar. "The Effect of Activating Agents on the Activated Carbon Prepared from *Feronia limonia* (L.) Swingle (Wood Apple) Shell." *J. Environ. Nanotechnol.*, vol. 1, no. 1, pp. 5-12, 2012.

STUDI SIFAT ELEKTRONIK PYROCHLORE $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ MENGUNAKAN DFT

NURANNISA WAHYUNI *, RAHMA HI MANRULU, IRWAN RAMLI +

*Program Studi Fisika, Fakultas Sains, Universitas Cokroaminoto Palopo
Jl. Lamaranginang Kota Palopo, Sulawesi Selatan,
Phone: +62 822-7146-3948*

**email : nurannisawahyuni31@gmail.com*

+email : irwan@uncp.ac.id

Abstrak. *Pyrochlore* adalah mineral yang akan mengeluarkan api berwarna hijau apabila dibakar dan memiliki struktur kubus. *Pyrochlore* memiliki banyak jenis salah satunya *pyrochlore* yang disintetiskan dengan senyawa lantanida. *Pyrochlore* lantanida ini memiliki *Metal Insulator Transition* (MIT) yang berbeda berdasarkan senyawa lantanidanya yang juga memiliki sifat elektronik yang berbeda. Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui sifat elektronik *pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$, sifat elektronik *pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ diketahui dengan cara menganalisis dan menghitung *Electronic Band Structure* dan *Density of State* (DOS) menggunakan metode komputasi *Density Functional Theory* (DFT) yang diimplementasikan pada perangkat lunak *Quantum Espresso*. Perhitungan dilakukan dengan *energy cut-off wave function* ($\text{ecutwfc}=50 \text{ Ry}$) dan K-Point optimal $4 \times 4 \times 4$, dimana hasil perhitungan tersebut diperoleh *electronic bands structure* yang menunjukkan bahwa tidak terdapat *band gap* atau *zero band gap* pada $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$. Pada perhitungan telah melibatkan efek Hubbard dan spin orbit Coupling tetapi belum melibatkan struktur spin.

Kata kunci: *Pyrochlore*, $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$, density functional theory, electronic bands structure, density of state

Abstract. *Pyrochlore* is a mineral which emit a green flame when burned and has a cubic structure. *Pyrochlore* has many types, one of them is synthesized with lanthanide compounds. *Pyrochlore* lanthanides have different Metal Insulator Transition (MIT) based on the lanthanide ion which also have different electronic properties. This research was conducted with the aim to determine the electronic properties of *pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ by means Electronic Band Structure and Density of State (DOS) using Density Functional Theory (DFT) computing method using Quantum Espresso software. The calculation is carried out with an energy cut-off wave function ($\text{ecutwfc}=50 \text{ Ry}$) with K-Point mesh $4 \times 4 \times 4$. The results showed that there is no band gap or zero band gap and the DOS calculation showed that the electron density across the fermi level. This calculation has considered the hubbard correction and spin-orbit coupling but still missing the magnetic ordering of the *pyrochlore*.

Keywords: *Pyrochlore*, $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$, density functional theory, electronic bands structure, density of state

1. Pendahuluan

1.1. *Pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$

Pyrochlore adalah senyawa yang memiliki struktur kubus. *Pyrochlore* digunakan sebagai bahan switching, elemen panas, elektroda oksigen, keramik permivitas tinggi, termistor, resistor film tebal, selain itu *pyrochlore* juga digunakan untuk

mengolah limbah radioaktif. *Pyrochlore* juga dapat disintesis dengan logam tanah jarang dalam hal ini adalah Lantanida (Ln) sebagai kation A.

Pyrochlore iridate, $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (Ln=Y dan senyawa lantanida) menunjukkan keadaan nontrival dan *metal insulator transition* (MIT) *pyrochlore* menunjukkan hasil yang bervariasi, dimana MIT *pyrochlore* menurun seiring perubahan Ln, selain itu *pyrochlore iridate* memiliki kopling spin-orbit (SCO) yang kuat di dalam atom Ir dan atom *d-f*, sehingga keadaan elektronik, seperti spin-liquid kuantum, sifat semimetal Weyl dapat diamati [1].

Pyrochlore iridate dari senyawa lantanida memiliki MIT yang berbeda karena perberbedaan jari-jari ionik *R* ditandai dengan sifat konduktivitas listrik $R = \text{Pr, Nd, Sm, dan Eu}$ menunjukkan sifat logam, sedangkan $R = \text{Gd, Tb, Dy, Ho, E, Tm, Yb, Lu dan Y}$ menunjukkan sifat semikonduktor. Perbedaan MIT ini disebabkan karena perbedaan jari-jari ionik lantanida. Unsur lantanida memiliki ion yang trivalen, dimana elektron $(5d)^5$ dari Ir^{4+} membentuk pita t_{2g} yang tidak terisi, dalam hal ini hanya unsur lantanida yang memiliki elektron *5d* dan dapat menunjukkan sifat konduktivitas listrik. Senyawa dari lantanida Pr diidentifikasi tidak memiliki MIT hingga suhu 0,3K, sedangkan identifikasi menggunakan efek Kondo pada $T_K = 25\text{k}$ dengan efek kuat *c-f* hibridisasi menunjukkan hasil bahwa batas jari-jari ionik untuk MIT ($\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$) berada antara Ln=Pr dan Nd. $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ untuk Ln=Nd, Sm, dan Eu memiliki MIT masing masing 36K, 117K, dan 120K [8].

$\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ adalah salah satu *pyrochlore* yang disintetiskan dengan senyawa lantanida. Pada awalnya Nd-227 adalah logam pada semua suhu, sedangkan dalam penelitian selanjutnya menunjukkan transisi MI baru terjadi pada 37 K. Survei $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ menunjukkan penurunan sistematis temperatur MIT pada jari-jari ionik Ln yang mencapai nilai nol antara Ln=Nd dan Pr, sehingga $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ adalah isolator yang paling dekat dengan $T=0$ quantum MIT. MIT $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ kontinu pada $T_{MI} \sim 32\text{K}$ [9].

Hasil *muon-spin relaxation* pada $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ *pyrochlore iridate* dilaporkan bahwa telah teramati presesi spin muon koheren spontan di bawah suhu transisi insulator logam (MIT) sekitar 33 K, yang menunjukkan munculnya tatanan magnet jarak jauh pada Ir^{4+} . Selain itu penurunan suhu terus dilakukan dan menunjukkan hasil bahwa bidang internal di situs muon meningkat lagi ketika suhu di bawah suhu sekitar 9 K. Peningkatan kedua bidang internal menunjukkan urutan Nd^{3+} yang konsisten dengan percobaan neutron sebelumnya. Selain itu, juga diperoleh hasil bahwa MIT dan urutan magnet Ir^{4+} memiliki hubungan dekat dan kopling spin-orbit besar dari Ir elektron *5d* memainkan peran kunci untuk MIT dan mekanisme pemesanan magnetik pada *pyrochlore iridates* dalam keadaan dasar [4].

Resistivitas Nd-227 bergantung pada suhu, dimana telah diamati penurunan resistivitas di bawah suhu kamar yang mencapai batas minimum $T \sim 65\text{K}$. Namun, pada suhu antara 65K dan 8K terdapat peningkatan resistivitas yang sangat lemah, sehingga disimpulkan bahwa medan magnet yang diterapkan pada 9 T memiliki efek yang sangat kecil terhadap resistansi berbeda dengan magnetoresistensi yang diamati pada suhu yang relatif rendah [3].

Pyrochlore $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ memiliki kombinasi kopling spin-orbit (SCO) yang kuat dan korelasi elektronik yang mungkin secara hipotesis mengarah ke berbagai fase topologi seperti Isolator Mott dan isolator semimetal Weyl [13]. *Pyrochlore iridate* ini memiliki fase topologi dengan struktur yang berbentuk tetrahedral dengan berbagai sudut, SOC yang kuat ini terdapat pada Ir *5d* elektron. Interaksi antara

SOC dan korelasi elektron-elektron (U) menghasilkan keadaan elektronik yang khas.

Magnetisasi bergantung pada suhu di bawah 120K, dan peningkatan tiba-tiba pada resistivitas bergantung pada suhu di bawah 8K. Muon spin menunjukkan bahwa magnetisasi histerik didorong oleh transisi ke keadaan tidak teratur magnetis, dan pada suhu di bawah 8K keadaan dasar diatur secara magnetis yang dibuktikan dengan presisi muon spontan. Pengukuran menunjukkan tidak adanya MI [3].

Kalkulasi struktur elektronik prinsip pertama yang sepenuhnya relativistik berdasarkan kerapatan spin lokal nonkolinear aproksimasi (LSDA) dilakukan pada *pyrochlore iridates* $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dan $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$. All-in, all-out antiferromagnetik (AF) order distabilkan oleh tolakan Coulomb di tempat $U > U_c$ dalam skema LSDA + U , dengan $U_c \sim 1.1$ eV dan 1.3 eV masing-masing untuk $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dan $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$. Semimetal AF dengan dan tanpa poin Weyl dan kemudian isolator AF yang secara topologis berturut-turut muncul dengan U yang semakin meningkat. Untuk $U = 1,3$ eV. $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ adalah isolator AF yang bercelah sempit dengan topologi yang memiliki momen magnet lokal yang teratur $\sim 0,5\mu_B / \text{Ir}$, sementara $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ hampir merupakan semimetal paramagnetik dengan konsentrasi elektron dan lubang 0,016/Ir, secara keseluruhan kesepakatan dengan eksperimen. Dengan penurunan parameter posisi oksigen x menggambarkan komposisi trigonal-ion IrO_6 oktahedra, $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ digerakkan melalui semimetal non-Fermi-cair yang hanya memiliki Fermi yang terisolasi Γ_8^+ , menunjukkan kuadrat band ke Z_2 isolator topologi [6].

Keadaan terurut magnetik dari *pyrochlore iridate* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (Nd227) dan $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (Sm227), menunjukkan transisi logam-isolator masing-masing pada 33 dan 117 K, dipelajari dengan metode muon-spin-relaxation (μSR) dan teori fungsi densitas (perhitungan DFT). Urutan magnetik jarak jauh dari momen Ir muncul dalam hubungannya dengan transisi isolator logam, dan tambahan urutan jarak jauh momen Nd/Sm dikonfirmasi pada suhu di bawah sekitar 10 K. Ditemukan bahwa all-in all-out struktur putaran paling meyakinkan menjelaskan hasil μSR saat ini dari Nd227 dan Sm227. Bidang internal yang diamati dibandingkan dengan nilai yang diperoleh dari perhitungan DFT. Batas bawah ukuran momen magnetik diperkirakan masing-masing 0,12 μ_B dan 0,2 μ_B untuk momen Ir dan Nd di Nd227, dan 0,3 μ_B dan 0,1 μ_B untuk momen Ir dan Sm di Sm227. Analisis lebih lanjut menunjukkan bahwa spin coupling antara momen Ir dan Nd/Sm bersifat feromagnetik untuk Nd227 dan antiferromagnetik untuk Sm227. Perubahan sifat elektronik dan magnetic karena pengaruh jari-jari ionik lantanida dan perubahan magnetic moment setiap ion yang dilaporkan menjadikan material ini menjadi menarik untuk dipelajari secara sistematis [2].

1.2. Electronic Band Structure

Elektron-elektron pada atom bebas mengisi orbital-orbital atom, membentuk sekumpulan tingkat-tingkat energi yang diskrit. Bila beberapa atom didekatkan bersama-sama dalam sebuah molekul, orbital atomik mereka terbelah. Ini menghasilkan sejumlah orbital molekuler yang sebanding dengan jumlah atom. Bila sejumlah besar atom (dalam orde 10^{20}) digabungkan bersama-sama membentuk padatan, banyaknya orbital ini menjadi sangat besar, dan perbedaan energi di antara mereka menjadi sangat kecil, sehingga tingkat-tingkat energi ini dapat dianggap membentuk pita energi kontinu, bukannya tingkat energi diskrit seperti yang dijumpai atom bebas. Namun beberapa selang energi tidak memiliki orbital, berapa pun banyaknya atom yang bergabung ini membentuk celah pita.

Dalam pita energi, tingkat energi begitu banyaknya sehingga membentuk kesinambungan. Pertama, selisih antara tingkat energi dalam padatan dapat dibandingkan dengan energi yang terus-menerus dipertukarkan dengan fonon (vibrasi atom). Kedua, selisih tersebut sebanding dengan ketidakpastian energi akibat prinsip ketidakpastian Heisenberg, untuk jangka waktu yang cukup panjang. Akibatnya, selisih antara tingkat-tingkat energi ini dapat diabaikan [5].

1.3. Density of States (DOS)

Density of States atau yang disingkat DOS adalah sistem yang menggambarkan jumlah keadaan per selang energi pada tingkat energi yang tersedia untuk ditempati elektron. Distribusi rapatan kontinyu dan tidak seperti sistem terisolasi. DOS yang tinggi pada tingkat energi tertentu menandakan bahwa terdapat banyak keadaan yang tersedia untuk di tempati. Dalam mekanika kuantum tidak semua gelombang atau partikel dapat ditemukan dalam beberapa sistem. Jarak antar atom dan muatan atom dalam material hanya memungkinkan elektron-elektron dengan panjang gelombang tertentu untuk ditemukan. Dalam sistem lain, struktur kristal material memungkinkan gelombang untuk merambat dalam satu arah dan menghambat perambatan gelombang pada arah yang lain [5].

1.4. Density Functional Theory

Density Functional Theory (DFT) merupakan metode komputasi berbasis kuantum untuk penentuan struktur elektronik suatu bahan pada keadaan dasar (*ground state*) melalui fungsional kerapatan elektron (electron density) karena DFT hanya bekerja pada keadaan energi *ground state* maka temperatur yang bekerja dalam perhitungan ini adalah 0K. Meskipun dilakukan pada temperatur 0K, penentuan struktur elektronik baik secara komputasi (dengan DFT) ataupun eksperimen cenderung memberikan hasil yang hampir sama, dengan kata lain akurasi perhitungan dengan DFT cukup tinggi sehingga sejak tahun 1990-an metode ini semakin populer digunakan di dunia fisika zat padat selain karena keakurasiannya yang tinggi, biaya komputasional relatif rendah dibandingkan dengan metode tradisional berbasis fungsi gelombang banyak elektron seperti misalnya Hartree-Fock Theory dan turunnya [10].

2. Metode Penelitian

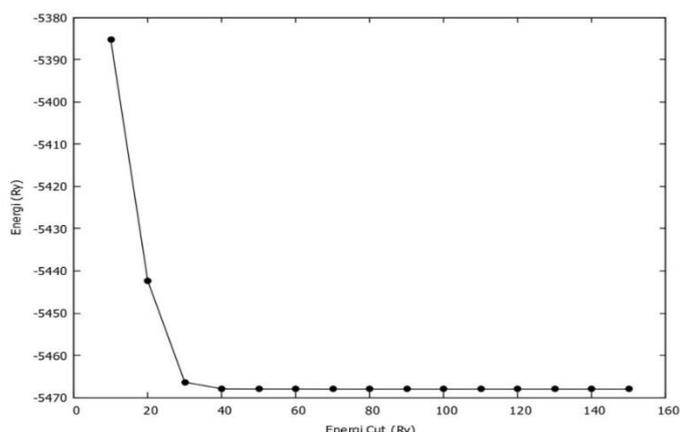
Penelitian ini dimulai dengan melakukan pengambilan data CIF $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dari pusat data *materials project* [7], file CIF tersebut terjabarkan menjadi input *pwscf* yang meliputi beberapa parameter yang menghasilkan output, sehingga memungkinkan untuk menentukan *energy cut-off* optimal dan K-point optimal dengan menggunakan perangkat lunak *Quantum Espresso*. Penentuan *energy cut-off* optimal dan K-point optimal ini bertujuan untuk menentukan input *nscf* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ sehingga *electronic bands structure* dan *density of states pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dapat diketahui untuk kemudian dianalisis untuk mengetahui sifat elektroniknya.

3. Hasil dan Pembahasan

Metode *Density Functional Theory* menggunakan perangkat lunak *quantum espresso* dimulai dengan menetapkan nilai *energy cut-off wave function* dan nilai kpoint untuk mendapatkan nilai energi yang konstan. Setelah mendapatkan nilai *ecutwfc* dan kpoint yang konvergen, maka dilanjutkan dengan perhitungan *electronic bands structure* dan *Density of States* dari *Pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$.

3.1. Energy Cut-Off Wave Function

Energy cut-off wave functional (*ecutwfc*) adalah batasan energi yang digunakan untuk mewakili ekspansi dari fungsi gelombang. *Energy cut-off wave functional optimal pyrochlore* ditentukan dengan menginput angka secara acak dan tetap memastikan deretan angka acak tersebut merupakan posisi *ground state Ecut-off pyrochlore*. Setelah mendapat energi total dari setiap energi *cut-off*, maka dibuatlah grafik perbandingan energi *cut-off* dengan energi totalnya.

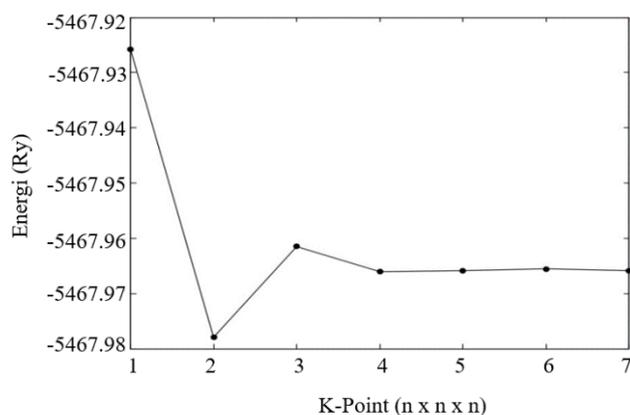


Gambar 1. Grafik energi cut-off dan energi total (Ry)

Grafik ini menunjukkan bahwa energi total menurun seiring bertambahnya *energy cut-off wave functional* dan terlihat lurus mulai dari *ecutwfc* = 40, maka energi total mulai konvergen pada nilai *energy cut* 40 Ry. Sehingga untuk menjamin konvergensi pada perhitungan selanjutnya, maka akan digunakan *energy cut* 50 Ry.

3.2. K-Point

Nilai k-point optimal ditentukan dengan menginput angka secara acak dengan tetap memastikan deretan angka tersebut merupakan posisi *ground k-point*. Struktur kristal *pyrochlore* adalah kubik, sedangkan K-point memiliki rumus umum, yaitu $n \times n \times n$, sehingga untuk menentukan nilai K-point optimal dilakukan dengan mengacak angka yang dimulai dengan $1 \times 1 \times 1$. Setelah energi total dari setiap k-point didapatkan, maka dibuatlah grafik perbandingan energi *cut-off* dengan energi totalnya.



Gambar 2. Grafik K-Point dan energi total (Ry)

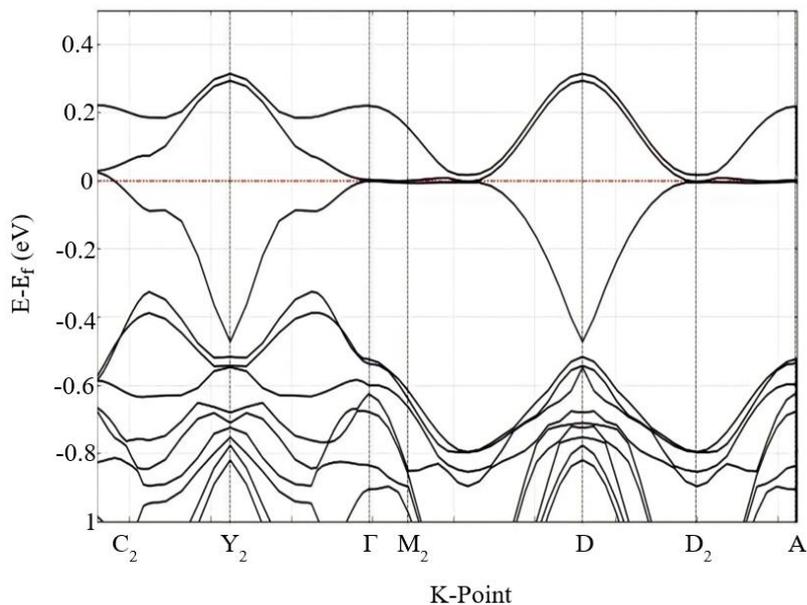
Grafik tersebut memperlihatkan perbandingan k-point dengan energy total. Energy total menurun seiring bertambahnya nilai k-point hingga grafik nampak konvergen mulai dari k-point = $4 \times 4 \times 4$. Oleh karena itu, untuk menjamin konvergensi nilai k-point yang digunakan adalah k-point = $4 \times 4 \times 4$ untuk perhitungan berikutnya.

3.3. Electronic Bands Structure

Perhitungan *self-consistent* (scf) dan nscf dilakukan menggunakan nilai optimal e-cut dan nilai optimal k-point, selain itu juga dilakukan perhitungan pada simetri k-point dengan memasukkan *High-symmetry points*. Hasil perhitungan tersebut yang akan menjadi patokan untuk perhitungan *electronic band structure*, maupun *Density Of States* (DOS) *pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$. Output *electronic band structure* yang dihasilkan menggunakan metode DFT akan diplot menggunakan perangkat lunak GNUPLOT *Electronic band structure* ini digunakan untuk menunjukkan beberapa ciri material, terutama sifat elektronik dan optic material tersebut.

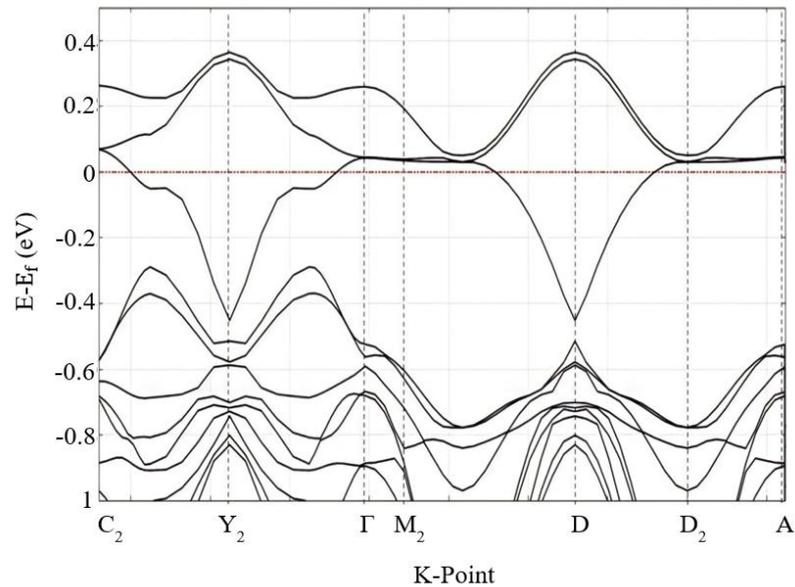
Tanpa koreksi Hubbard dan tanpa Spin Orbit Copling

Gambar 3 memperlihatkan kurva bands structure tanpa koreksi hubbard dan tanpa *Spin Orbit Copling*. Gambar tersebut menunjukkan tingkat energi yang dapat electron *pyrochlore*, diantara pita valensi dan pita konduksi pada *pyrochlore* tidak terdapat celah antara pita valensi dan pita konduksi, sehingga disebut sebagai *zero band gap* (celah pita).



Gambar 3. Electronic bands structure $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ tanpa Hubbard ($U=0$) dan tanpa Spin Orbit Copling

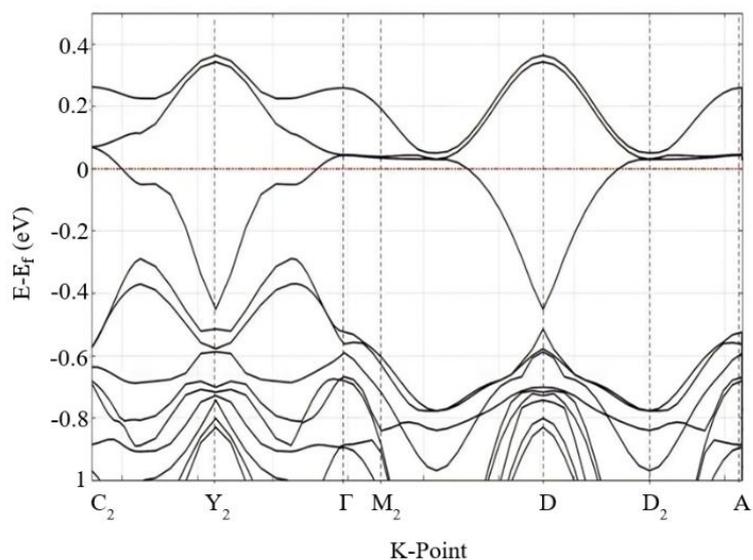
Dengan koreksi Hubbard dan tanpa Spin Orbit Copling



Gambar 4. Electronic bands structure $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dengan koreksi Hubbard ($U=1,3\text{eV}$) dan tanpa Spin Orbit Copling

Gambar *bands structure* dengan hubbard ($U=1,3$ eV) dan tanpa SOC di atas menunjukkan keadaan pita energi, yakni diantara pita valensi dan pita konduksi tidak terdapat *band gap* atau celah antara pita valensi dan pita konduksi *zero band gap*. pita valensi (*valance band*) adalah pita energi yang berada di bawah level Fermi, sedangkan pita konduksi (*conduction band*) adalah pita energi yang berada di atas level Fermi.

Dengan koreksi Hubbard dan dengan Spin Orbit Copling



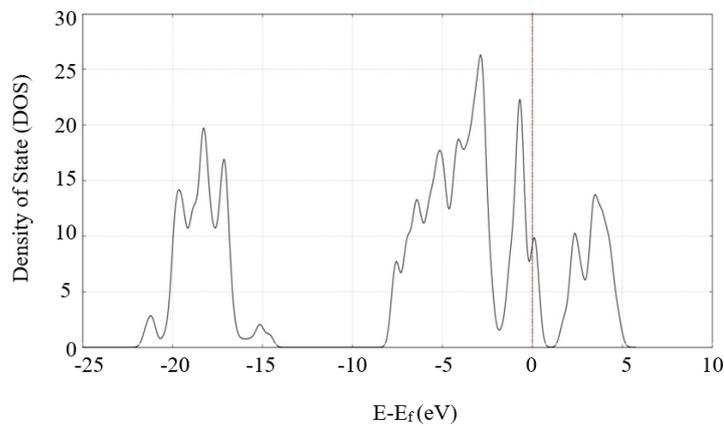
Gambar 5. Electronic bands structure $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dengan koreksi Hubbard ($U=1,3\text{eV}$) dan Spin Orbit Copling

Gambar *electronic bands structure* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ dengan koreksi hubbard ($U=1,3$ eV) dan dengan koreksi *Spin Orbit Copling* di atas juga menunjukkan keadaan *zero band gap*. Keadaan ini jelas terlihat melalui pita energi yang tampak melewati tingkat energi Fermi sebesar 11.0999 eV.

3.4. Density Of States (DOS)

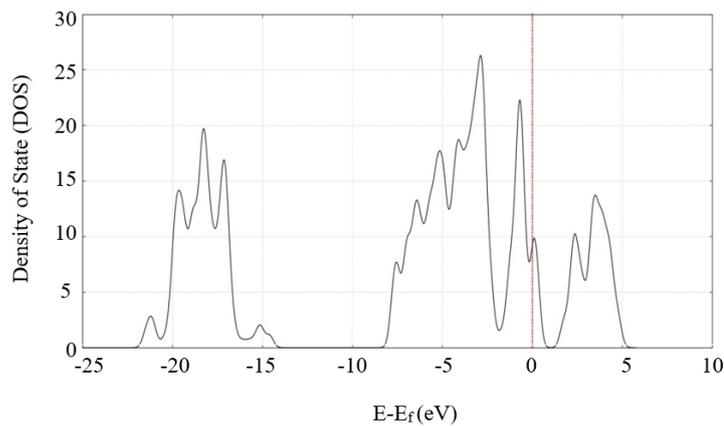
Perhitungan density of state dimulai dengan menghitung nilai scf dan nscf yang telah konvergen. Setelah didapatkan hasilnya, maka akan dilanjutkan dengan menghitung input file dos yang akan menghasilkan output berupa data dos. Output yang telah dihasilkan tersebut akan diplot menggunakan perangkat lunak GNUPLOT.

Tanpa koreksi Hubbard dan tanpa *Spin Orbit Copling*



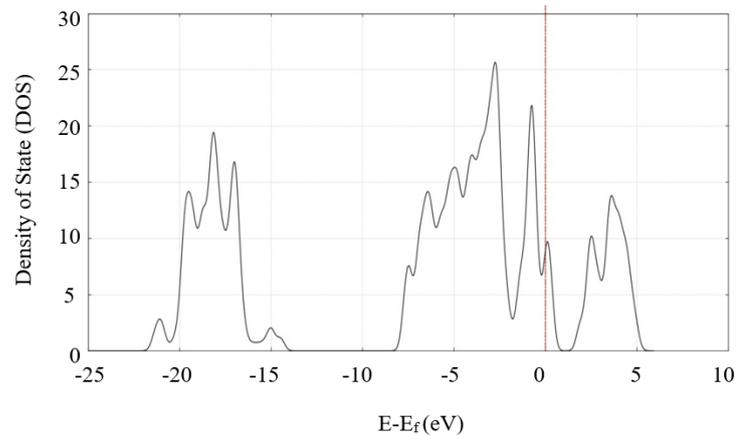
Gambar 6. Kurva *Density of State pyrochlore* tanpa koreksi Hubbard ($U=0$) dan tanpa *Spin Orbit Copling*

Dengan koreksi Hubbard dan tanpa *Spin Orbit Copling*



Gambar 7. Kurva *Density of State pyrochlore* dengan koreksi Hubbard ($U=1,3$ eV) dan tanpa *Spin Orbit Copling*

Dengan koreksi Hubbard dan Spin Orbit Copling



Gambar 8. Kurva *Density of State* pyrochlore dengan koreksi Hubbard ($U=1,3$ eV) dan *Spin Orbit Copling*

Density Of States (DOS) seluruh jumlah keadaan elektron pada setiap level energy dari perhitungan *band structure* yang dinyatakan dalam DOS. Gambar kurva DOS *Pyrochlore* tanpa koreksi *Hubbard* dan tanpa SOC memiliki hasil yang sama dengan DOS yang ditambahkan dengan koreksi *Hubbard* ($U=1,3$ eV) dan tanpa SOC, begitupun kurva DOS dengan *Hubbard* ($U=1,3$ eV) dan dengan SOC, ketiganya menunjukkan bahwa pyrochlore tidak memiliki celah antara pita valensi dan pita konduksi.

Perhitungan *electronic band structure* pyrochlore $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ menggunakan Metode *Density Functional Theory* dilakukan dengan tiga model koreksi dimana pada model pertama dilakukan perhitungan band structure tanpa koreksi *Hubbard* ($U=0$) dan tanpa SOC dengan energy Fermi 11.279 eV, pada model kedua dilakukan perhitungan dengan menambahkan koreksi *Hubbard* ($U=1,3$ eV) dan tanpa SOC dengan energy Fermi 11.082 eV, sedangkan pada model ketiga perhitungan *bands structure* ditambahkan dengan koreksi *Hubbard* ($U=1,3$ eV) dan koreksi SOC dengan energy Fermi 11.0999 eV. Tiga model koreksi yang berbeda ini memiliki energy Fermi yang juga berbeda, yaitu menurun sesuai dengan penambahan koreksinya. Selain itu, pada kurva dapat terlihat perbedaan, yaitu pada model *electronic bands structure* 2 dan *electronic bands structure* 3 lebih padat dibandingkan dengan *electronic bands structure* 1 yang disebabkan karena *band symmetry electronic bands structure* 1 lebih besar, yakni sebesar $-25,973$ eV dibandingkan dengan *band symmetry electronic bands structure* 2 dan *electronic bands structure* 3, yakni sebesar $-26,011$. Pada struktur pita elektronik pyrochlore juga terdapat *dirac cone* atau titik pertemuan antara pita valensi dan pita konduksi yang berbentuk kerucut.

Dirac point ini menunjukkan bahwa pyrochlore memiliki interaksi electron-elektron yang menginduksi fase semimetal Weyl. *Pyrochlore* $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ memiliki *Spin-Orbit Copling* (SOC) yang kuat, dan interaksi antara SOC dengan korelasi elektron-elektron (U) ini akan menghasilkan keadaan elektronik yang khas, dimana elektronik Nd^{2+} mengalami isolasi yang ditandai dengan adanya Metal Insulator

Transition (MIT). Namun pada penelitian ini menambahkan nilai SOC dan nilai U tidak menunjukkan hasil yang signifikan.

Pada grafik Density Of States (DOS) terdapat tingkat energi yang melewati energy Fermi yang menunjukkan sifat logam. Hal ini sesuai dengan hasil eksperimen teoritis, dimana Nd227 memiliki MIT kontinu pada $T_{MI} \sim 32K$ [9]. Nd227 memiliki sifat kemagnetan ferromagnetic yang disebabkan karena adanya momen magnetik spin elektron yang tidak berpasangan, masing-masing spin elektron yang tidak berpasangan tersebut akan memberikan medan magnetik. Dari hasil perhitungan *electronic band structure* dan DOS dapat diketahui bahwa sifat elektronik *pyrochlore* Nd₂Ir₂O₇ adalah konduktor.

4. Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa :

- Sifat elektronik *pyrochlore* Nd₂Ir₂O₇ dapat diketahui dengan menggunakan gambaran *electronic bands structure* serta *Density Of States* (DOS). Perhitungan *electronic bands structure* dan *Density Of States* (DOS) dilakukan menggunakan metode *Density Functional Theory* (DFT) yang diimplementasikan dengan menggunakan perangkat lunak *Quantum Espresso*.
- Perhitungan dilakukan dengan $ecutwfc = 50$ Ry dengan K-Point = 4 x 4 x 4. Hasil perhitungan pita energy menggunakan metode DFT memperlihatkan bahwa *pyrochlore* tidak memiliki celah antara pita valensi dan pita konduksi atau yang disebut dengan *zero band gap* baik pada ketiga model *bands structure* dengan energi Fermi yang berbeda. Daftar Pustaka

Ucapan Terima Kasih

Penelitian ini dapat dilaksanakan dengan baik berkat bantuan dari berbagai pihak, untuk itu peneliti mengucapkan terima kasih kepada Kepala Laboratorium Komputer Fakultas Sains Universitas Cokroaminoto Palopo yang telah memberikan akses untuk penelitian ini.

Daftar Pustaka

1. J. Angel, R. Asih, H. Nomura, T. Taniguchi, K. Matsuhira, M.R. Ramadhan, I. Ramli, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, M. Ismail, S. Sulaiman, & I. Watanabe, Magnetic Properties of Hole-Doped Pyrochlore Iridate (Y_{1-x-y}Cu_xCa_y)₂Ir₂O₇, In Materials Science Forum, Vol. 966 (2019), p. 269-276.
2. R. Asih, N. Adam, S.S. Mohd-Tajudin, D.P. Sari, K. Matsuhira, H. Guo, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, T. Nakano, Y. Nozue, S. Sulaiman, & I. Watanabe, Magnetic moments and ordered states in pyrochlore iridates Nd₂Ir₂O₇ and Sm₂Ir₂O₇ studied by Muon-spin relaxation, Journal Of The Physical Society Of Japan, 86(2), 024705, (2017).
3. S.M. Disseler, C. Dhital, T.C. Hogan, A. Amato, S.R. Giblin, C. de la Cruz, A. Daoud-Aladine, S.D. Wilson, M.J. & Graf, Magnetic order and the electronic ground state in the pyrochlore iridate Nd₂Ir₂O₇, Physical Review B, 85(17), 174441, (2012).

4. H. Guo, K. Matsuhira, I. Kawasaki, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, I. Watanabe, & Z.A. Xu, Magnetic Order In The Pyrochlore Iridate Nd₂Ir₂O₇ Probed By Muon Spin Relaxation, *Physical Review B*, 88(6), 060411, (2013).
5. G. Hutagalung, Perhitungan Electronic Band Structure dan Foton Dos Silikon Menggunakan Metode DFT dan Teknik Hamburan Neutron Inelastik, Skripsi, Sumatera Utara, Universitas Sumatera Utara, (2018).
6. F. Ishii, Y.P. Mizuta, T. Kato, T. Ozaki, H. Weng & S. Onoda, First-principles study on cubic pyrochlore iridates Y₂Ir₂O₇ and Pr₂Ir₂O₇, *Journal of the Physical Society of Japan*, 84(7), 073703, (2015).
7. Materialsproject.org, mp-1190299. <http://materialsproject.org/materials/mp-1190299/>. 16 Mei 2021.
8. K. Matsuhira, M. Wakeshima, R. Nakanishi, T. Yamada, A. Nakamura, W. Kawano, S. Takagi & Y. Hinatsu. Metal–Insulator Transition in Pyrochlore Iridates Ln₂Ir₂O₇ (Ln= Nd, Sm, and Eu), *Journal of the Physical Society of Japan*, 76(4), 043706, (2007).
9. Z. Tian, Y. Kohama, T. Tomita, H. Ishizuka, T.H. Hsieh, J.J. Ishikawa, K. Kindo, L. Balents & S. Nakatsuji, Field-induced quantum metal–insulator transition in the pyrochlore iridate Nd₂Ir₂O₇, *Nature Physics*, 12(2), 134-138. 84(7), 073703, (2016).
10. T.D.K. Wungu & Suprijadi, *Studi Komputasi Density Functional Theory dalam Kajian Pengaruh Exchange Cation pada Proses Penyerapan Logam Berat oleh Montmorillonite*, ISBN: 978-602-61045-3-3, (2017).

KAJIAN PERTUMBUHAN DAN PERSEBARAN AWAN HUJAN PADA SAAT BANJIR BERBASIS DATA SATELIT HIMAWARI-8 (Studi Kasus : Banjir di Kab. Kerinci dan Kota Sungai Penuh 4 Juni 2020)

IQBAL GUSRANDA ^{1,*}, MARIA OCTAVIA ROSNAULI HUTAGALUNG ¹, NADHILAH
HUMAIRAH SALWA SALSABIL ¹, ADITYA MULYA ²

¹ Program Studi Meteorologi, Sekolah Tinggi Meteorologi Klimatologi dan Geofisika (STMKG)
Jl. Perhubungan I No. 5 Komplek BMKG Pondok Betung Bintaro, Pondok Aren, Tangerang
Selatan, Banten Kode Pos 15221, Telp.(021) 73691621

² Sekolah Tinggi Meteorologi Klimatologi dan Geofisika (STMKG)
Jl. Perhubungan I No. 5 Komplek BMKG Pondok Betung Bintaro, Pondok Aren, Tangerang
Selatan, Banten Kode Pos 15221, Telp.(021) 73691621

*email : iqbal.gusranda@stmkg.ac.id

Abstrak. Telah terjadi banjir besar di Kabupaten Kerinci dan Kota Sungai Penuh Provinsi Jambi pada tanggal 4 Juni 2020. Banjir diakibatkan oleh intensitas curah hujan yang tergolong hujan lebat yang terjadi di wilayah kajian dan sekitarnya. Dampak yang ditimbulkan oleh banjir tersebut ialah ribuan rumah terkonfirmasi terendam banjir dan lumpuhnya aktivitas manusia pada kawasan yang terdampak. Berdasarkan hal tersebut maka dilakukan penelitian untuk mengkaji dinamika atmosfer diantaranya kondisi suhu permukaan laut, *mean sea level pressure*, *streamline*, jumlah curah hujan, dan data citra satelit Himawari-8 pada tanggal kejadian. Data diolah dalam bentuk grafik dan peta spasial kemudian dilakukan analisis deskriptif. Berdasarkan hasil analisis, hujan lebat yang terjadi di wilayah Kabupaten Kerinci dan Kota Sungai Penuh dipengaruhi oleh suhu permukaan laut, *mean sea level pressure*, dan *streamline* yang mendukung terbentuknya awan konvektif. Terjadinya hujan lebat seringkali terkait dengan keberadaan awan Cumulonimbus (Cb). Hal ini dikarenakan awan Cb identik dengan dimensi yang besar serta mengandung banyak partikel presipitasi seperti uap air dan kristal es. Berdasarkan pengamatan awan melalui satelit himawari-8 diketahui bahwa, hampir seluruh awan hujan yang muncul saat tanggal kejadian merupakan awan Cb yang mempunyai nilai suhu puncak awan terendah mencapai nilai -82.5°C .

Kata kunci: hujan lebat, banjir, cumulonimbus, satelit Himawari-8

Abstract. Major floods occurred in Kerinci Regency and Sungai Penuh City, Jambi Province on June 4, 2020. The flooding was caused by the intensity of rainfall which was classified as heavy rain that occurred in the study area and its surroundings. The impact of the flood is that thousands of houses are confirmed to be flooded and human activities are paralyzed in the affected area. Based on this, a study was conducted to examine the dynamics of the atmosphere which includes sea surface temperature conditions, average sea surface pressure, streamline, rainfall amount, and Himawari-8 satellite imagery data on the date of the incident. The data is processed in the form of graphs and spatial maps and then descriptive analysis is carried out. Based on the results of the analysis, heavy rain that occurred in Kerinci Regency and Sungai Penuh City is influenced by sea surface temperature, average sea surface pressure, and current lines that support the formation of convective clouds. The occurrence of heavy rain is often associated with the presence of Cumulonimbus (Cb) clouds. This is because Cb clouds are identical with large dimensions and contain many precipitation particles such as water vapor and ice crystals. Based on cloud observations via the Himawari-8 satellite, it is known that almost all the

rain clouds that appeared on the date of the incident were Cb clouds which had the lowest cloud top temperature value reaching -82.5°C .

Keywords: heavy rain, flood, cumulonimbus, Himawari-8 satellite

1. Pendahuluan

Banjir didefinisikan sebagai tergenangnya suatu tempat akibat meluapnya air yang melebihi kapasitas pembuangan air disuatu wilayah dan menimbulkan kerugian fisik, sosial dan ekonomi [1]. Banjir adalah ancaman musiman yang terjadi apabila meluapnya tubuh air dari saluran yang ada dan menggenangi wilayah sekitarnya. Banjir adalah ancaman alam yang paling sering terjadi dan paling banyak merugikan, baik dari segi kemanusiaan maupun ekonomi [2].

Pada tanggal 4 Juni 2020 telah terjadi hujan lebat di wilayah Kabupaten Kerinci dan Kota Sungai Penuh. Kejadian ini mengakibatkan beberapa wilayah tergenang banjir. Diinfokan bahwa ribuan rumah dilaporkan terendam banjir diantaranya terjadi di 6 kecamatan di Kabupaten Kerinci dan 3 kecamatan di Kota Sungai Penuh [3]. Banjir dapat disebabkan oleh limpasan air permukaan (*runoff*) yang meluap dan volumenya melebihi kapasitas pengaliran sistem drainase atau sistem aliran sungai [4]. Dengan melihat dampak yang ditimbulkan perlu dilakukan analisis untuk mengetahui penyebab kejadian hujan lebat yang berdampak banjir pada 4 Juni 2020 dengan melihat karakteristik awan dan hujan dalam periode kejadian.

Salah satu instrumen yang dapat digunakan untuk mengidentifikasi awan konvektif atau awan yang berpotensi menimbulkan hujan adalah Satelit Himawari-8. Satelit ini merupakan satelit cuaca meteorologi geostasioner yang merupakan generasi penerus satelit MTSAT 2 yang diluncurkan pada tahun 2015 oleh JMA yang berfungsi untuk mengamati parameter meteorologi, antara lain untuk mengamati perkembangan awan Cumulonimbus. Satelit ini memiliki 16 kanal yang terdiri dari kanal Visibel, Near-IR, IR WV, SW IR, dan LW IR. Satelit ini menyediakan data citra pengamatan setiap 10 menit sehingga dapat memberikan atau menggambarkan perkembangan fenomena meteorologi seperti awan Cumulonimbus secara komprehensif [5].

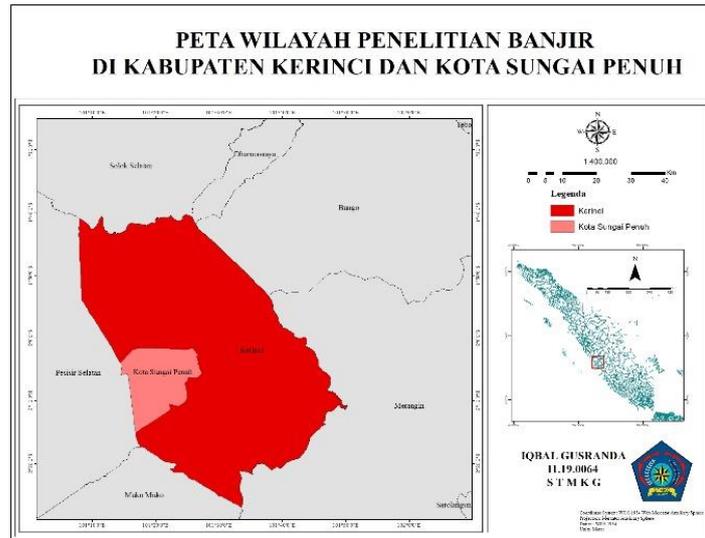
Hasil pengukuran curah hujan di Stasiun Meteorologi Depati Parbo pada periode Kamis, 4 Juni 2020 tinggi curah hujan mencapai 58 mm dan masuk dalam kategori hujan lebat. Hujan lebat adalah hujan dengan intensitas minimum 50 mm / 24 jam atau 20 mm / jam [6].

Jurnal ini ditulis dengan tujuan untuk mengetahui kondisi sebaran awan saat sebelum, sesaat, dan setelah hujan yang menyebabkan banjir di wilayah kajian.

2. Metode Penelitian

2.1. Lokasi Penelitian

Lokasi penelitian ini mengambil daerah studi di wilayah Kabupaten Kerinci dan Kota Sungai Penuh dan sekitarnya sebagai wilayah yang terkena dampak dari hujan lebat tersebut dengan lokasi titik koordinat $1^{\circ}40' - 2^{\circ} 20' \text{ LS}$ dan $101^{\circ}08' - 101^{\circ} 50' \text{ BT}$.



Gambar 1. Peta Wilayah Penelitian

2.2. Data dan Metode

Data yang digunakan dalam penelitian ini diantaranya merupakan data hasil pengamatan curah hujan pada tanggal 4 Juni 2020 yang diperoleh dari Stasiun Meteorologi Kelas III Depati Parbo – Kerinci.

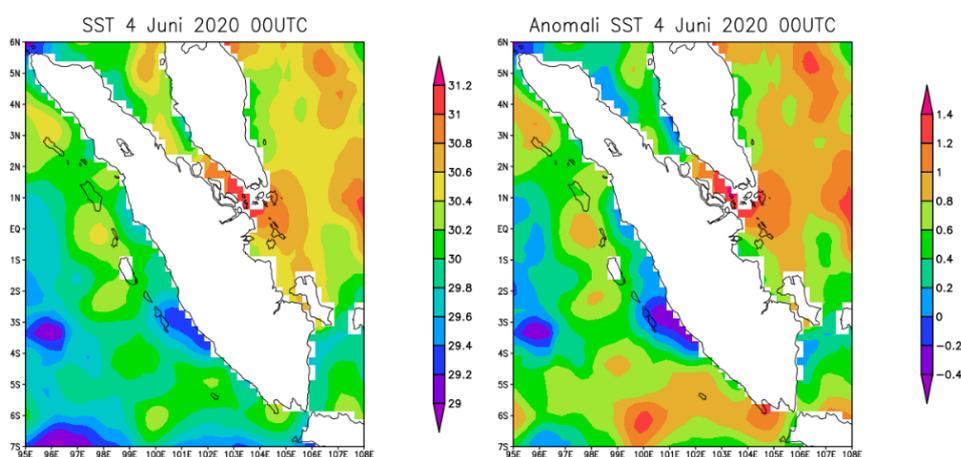
Raw data satelit Himawari-8 yang digunakan adalah kanal 8, 13, dan 15 yang diperoleh dari database BMKG, dengan format sataid yang memiliki resolusi temporal tiap 10 menit untuk menampilkan produk peringatan dini cuaca signifikan dari awan Cb [7]. Kanal 13 dan 15 merupakan kanal IR yang digunakan untuk melihat suhu puncak awan dan identifikasi awan pada kejadian di lokasi penelitian pada tanggal 4 Juni 2020, Lalu kanal 8 merupakan kanal *Water Vapor* yang digunakan untuk melihat uap air. *Raw data* satelit diolah dengan menggunakan *software* GMSLPD. Hasil pengolahan ini berupa citra suhu puncak awan secara spasial dengan satuan derajat Celcius ($^{\circ}\text{C}$), guna melihat perkembangan suhu puncak awan untuk analisis pembentukan awan dan untuk melihat kontur awan.

Data Reanalysis pada tanggal 4 Juni 2020 dalam bentuk *Network Common Data Form* (netCDF). Data tersebut diakses secara interaktif melalui NOAA *Physical Sciences Laboratory* di alamat https://psl.noaa.gov/cgi-bin/db_search/SearchMenus.pl, meliputi: *sea surface temperature* berupa data NOAA *High-resolution Blended Analysis Daily Mean* dan *mean sea level pressure* berupa data NCEP/DOE AMIP-II *Reanalysis (Reanalysis-2) 4 Time Daily Individual Obs.* Database BMKG meliputi data *streamline*. Aplikasi *Grads* digunakan untuk mengolah dan menampilkan data Reanalisis tersebut. Metode yang digunakan dalam penelitian ini adalah metode deskriptif analitis baik pada hasil tampilan citra satelit maupun pemodelan data *Grads*. Setelah data diolah, maka analisis data dilakukan dengan metode *life history*. Metode *life history* digunakan untuk menjelaskan waktu tahapan pertumbuhan awan konvektif. Perkembangan awan konvektif dapat dilihat secara rinci dengan memerhatikan waktu hidup per fase dan pergerakannya dari koordinat sel. Model *output Grads* menjadi pedoman untuk menggambarkan kondisi dinamis atmosfer.

3. Hasil dan Pembahasan

Curah hujan yang ditakar di Stasiun Meteorologi Kelas III Depati Parbo Kerinci pada periode 4 Juni 2020 akumulasi 24 jam ialah 58 mm. Dengan nilai curah 58 mm, hujan pada kondisi tersebut digolongkan ke dalam kategori hujan lebat.

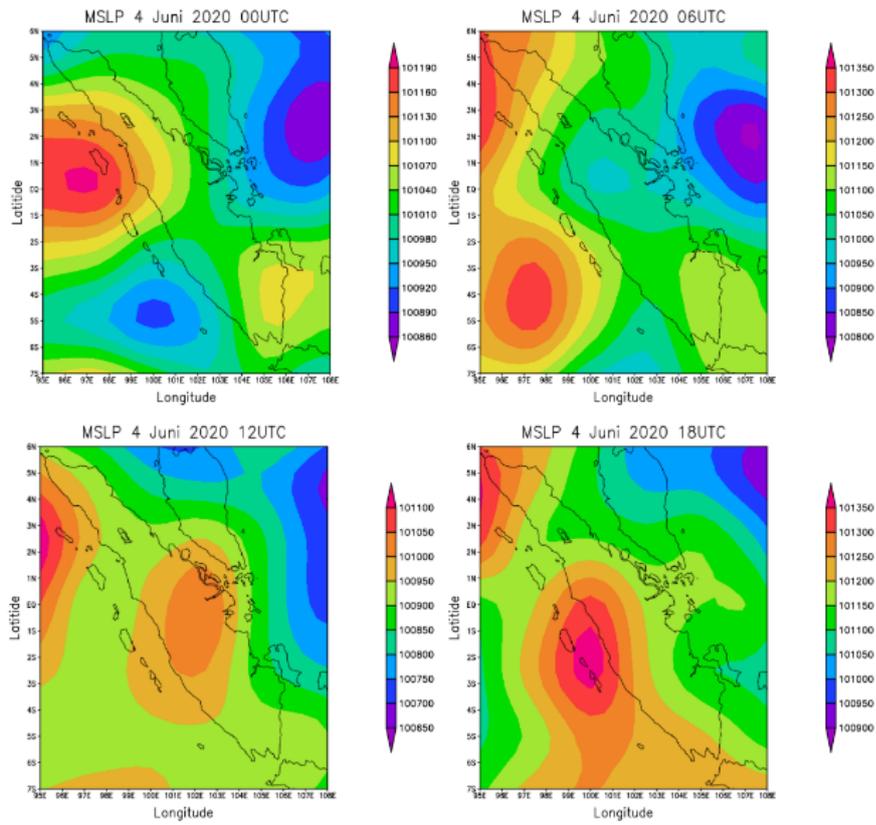
Sea surface temperature (SST) merupakan salah satu parameter yang digunakan untuk melihat keadaan suhu permukaan laut untuk mendukung terjadinya konvektivitas atau pertumbuhan awan konvektif. Terpantau di sebelah utara Kepulauan Riau dan Bangka Belitung suhu berkisar 30 – 31°C yang mana suhu tersebut mendukung untuk pertumbuhan awan konvektif.



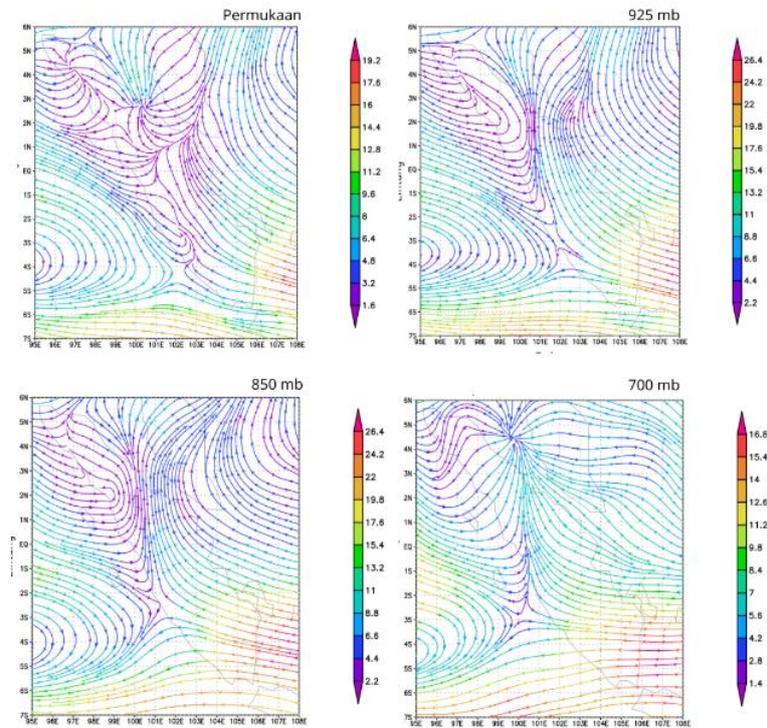
Gambar 2. Sea Surface Temperature dan Anomali Sea Surface Temperature 4 Juni 2020 jam 00 UTC

Lalu berdasarkan nilai anomali *sea surface temperature* diketahui bahwa nilai anomali SST positif di kisaran 0,6 – 1,4°C di wilayah Kepulauan Riau dan Bangka Belitung sehingga dengan keadaan ini mendukung untuk terbentuknya awan konvektif.

Mean Sea Level Pressure (MSLP) merupakan salah satu parameter yang juga digunakan untuk melihat kondisi dan distribusi dari awan konvektif. Pada jam 00 – 06 UTC terlihat di wilayah Kabupaten Kerinci dan Kota Sungai Penuh terdapat tekanan rendah sebesar 1010,1 mBar dan pada jam 06 UTC sebesar 1011,0 mBar. Hal ini menunjukkan pada periode waktu tersebut bahwa wilayah kajian berpotensi menjadi daerah penumpukan awan yang dapat menghasilkan awan – awan konvektif penyebab hujan. Pada jam 06 – 12 UTC tekanan tinggi berdistribusi ke daratan yang tentunya menghasilkan angin yang dapat menggerakkan awan hasil konvektivitas. Lalu pada jam 12 – 18 UTC tekanan tinggi berada di sekitar daratan dan pesisir selatan Sumatera Barat.

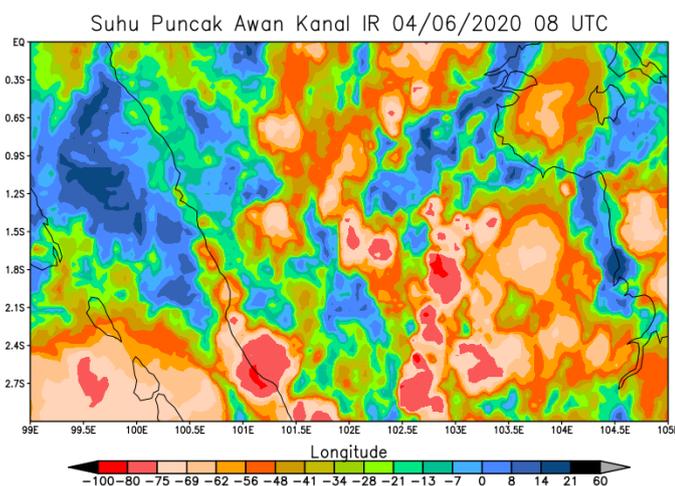


Gambar 3. Mean Surface Level Temperature 4 Juni 2020

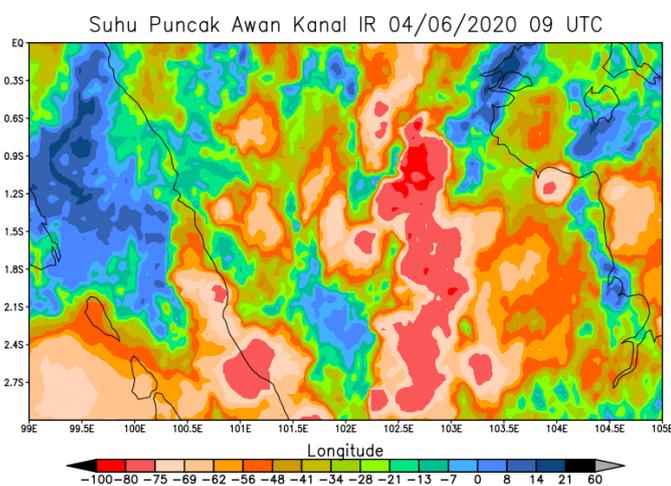


Gambar 4. Streamline Lapisan Permukaan, 925 mBar , 850 mBar , dan 700 mBar 4 Juni 2020

Berdasarkan output *streamline* angin lapisan permukaan, 925 mBar , 850 mBar , 700 mBar jam 06 UTC terdapat pembelokan angin di daerah sekitar lokasi penelitian. Dengan adanya pembelokan dan pertemuan angin dapat menimbulkan penumpukan awan yang selanjutnya berpotensi menghasilkan awan konvektif di lokasi penelitian.

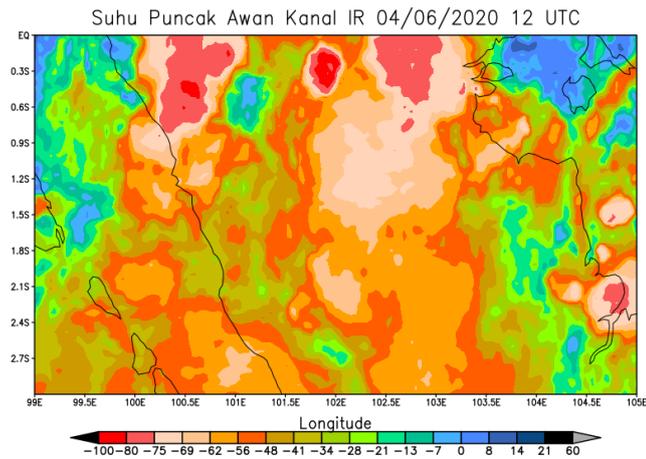


Gambar 5. Suhu Puncak Awan dengan suhu dingin mulai muncul

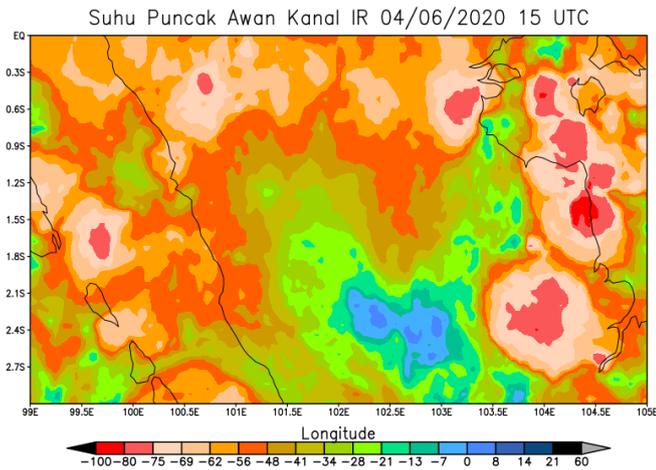


Gambar 6. Suhu Puncak Awan dengan suhu dalam fase tumbuh/berkembang

Berdasarkan gambar diatas, pada jam 08 UTC mulai menunjukkan adanya konvektifitas atau tumbuhnya awan berwarna merah atau konvektif di sekitar wilayah penelitian, hal ini disebut dengan fase pertumbuhan awan. Lalu pada jam 09 – 12 UTC awan mulai tumbuh dan jenuh hingga matang dengan warna merah yang lebih padat. Lalu pada jam 12 – 15 UTC awan meluruh yang ditunjukkan dengan berubahnya warna merah di daerah kajian pada citra satelit.



Gambar 7. Suhu Puncak Awan dengan suhu dalam fase matang

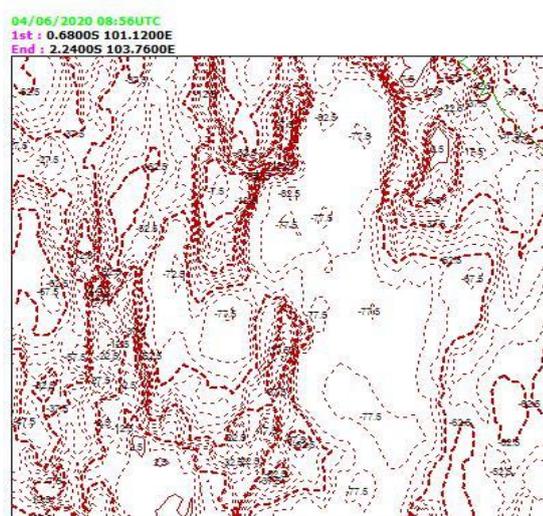


Gambar 8. Suhu Puncak Awan dalam fase meluruh

Berdasarkan grafik *time series* di wilayah penelitian tanggal 4 Juni 2020 jam 06 – 18 UTC sesuai dengan periode terjadinya banjir, terlihat pola pertumbuhan mulai terbentuk saat beberapa jam sebelum terjadinya hujan lebat. Pembentukan awan konvektif mulai terbentuk pada jam 08 UTC, dan berangsur mengalami fase pertumbuhan hingga suhu -60°C pada jam 09 UTC. Pada jam 09 – 12 UTC hampir suhu konstan di -60°C yang menunjukkan fase pematangan dari awan konvektif. Lalu pada jam 12 – 16 UTC peluruhan mulai terjadi atau presipitasi mulai turun hingga awan konvektif tersebut habis. Selama periode presipitasi, hujan dikategorikan lebat dengan hasil observasi penakaran jumlah hujan oleh stasiun observasi terdekat.



Gambar 9. Citra IR time series 06 – 18 UTC tanggal 4 Juni 2020



Gambar 10. Citra IR Countur 09 UTC tanggal 4 Juni 2020

Berdasarkan *output* kontur awan di sekitar daerah penelitian dan sekitarnya terlihat bahwa suhu puncak awan di wilayah tersebut mencapai $-77,5^{\circ}\text{C}$ bahkan awan lain disekitarnya mencapai $-82,5^{\circ}\text{C}$ dengan awan konvektif lebih dari satu di wilayah kajian. Dengan nilai suhu tersebut, diindikasikan bahwa awan-awan yang terbentuk di wilayah tersebut adalah awan-awan dingin yang merupakan awan Cumulonimbus. Awan tersebut dapat menghasilkan hujan ringan hingga hujan dengan intensitas yang sangat lebat.

4. Kesimpulan

Berdasarkan hasil dan pembahasan dapat disimpulkan bahwa pertumbuhan awan hujan yang mengakibatkan hujan dengan intensitas yang lebat di wilayah

Kabupaten Kerinci, Kota Sungai penuh dan sekitarnya yang memberikan dampak banjir di 6 Kecamatan di Kabupaten Kerinci dan 3 Kecamatan di Kota Sungai Penuh dipengaruhi oleh beberapa aspek, diantaranya *sea surface temperature*, *mean sea level pressure*, dan kondisi angin yang mendukung terbentuknya awan konvektif. Hasil analisis penginderaan jauh dengan menggunakan satelit Himawari-8 menunjukkan awan yang terbentuk yaitu awan Cumulonimbus dengan persebaran awan Cumulonimbus tampilan kontur lebih dari satu sel awan dengan suhu awan mencapai -77,5 s.d -82,5 °C.

Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Pak Aditya Mulya selaku dosen pembimbing, Pegawai BMKG Stasiun Meteorologi Kelas III Depati Parbo Kerinci, taruna/i STMKG yang terlibat, dan seluruh pihak yang ikut membantu dan memberikan akses data untuk menunjang penelitian ini.

Daftar Pustaka

1. H.P Rahayu dkk, Banjir dan Upaya Penanggulangannya, PROMISE Indonesia, Bandung, 2009.
2. IDEP, Panduan Umum Penanggulangan Bencana Berbasis Masyarakat Edisi ke-2, Yayasan IDEP, Bali, 2007.
3. JEKTV, Puluhan Ribu Rumah terendam Banjir di Kerinci dan Sungai Penuh, <https://jektv.co.id/read/2020/06/05/1470/puluhan-ribu-rumah-terendam-banjir-di-kerinci-dan-sungai-penuh/>, 5 Juni 2020.
4. L. Sebastian, Pendekatan dan Penanggulangan Banjir, Dimanika Teknik Sipil, Vol. 8 (2008), p. 162-169.
5. Mahrifoh, Kajian Pemanfaatan Data Citra Satelit Himawari-8 Untuk Mendeteksi Awan Signifikan dari Awan Cumulonimbus, Skripsi, Tangerang Selatan, Sekolah Tinggi Meteorologi Klimatologi dan Geofisika, 2017.
6. BMKG, Prosedur Standar Operasi Pelaksanaan Peringatan Dini Pelaporan dan Diseminasi Informasi Cuaca Ekstrim, Badan Meteorologi Klimatologi dan Geofisika, Jakarta, 2010.
7. BMKG, Pedoman Operasional Penginderaan Citra Satelit Cuaca, Badan Meteorologi Klimatologi dan Geofisika, Jakarta, 2016.

UJI FILTRASI MODEL POLUTAN METHYLEN BLUE MENGUNAKAN MEMBRAN KULIT TELUR

FITRILAWATI *, YASMIN FAUZIAH, GITA MAULIDA, NORMAN SYAKIR

*Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat*

**email : fitrilawati@phys.unpad.ac.id*

Abstrak. Membran filtrasi merupakan salah satu metode yang banyak digunakan untuk pengolahan air limbah dengan prinsip pemisahan dan pemurnian air. Pada makalah ini dilaporkan hasil uji filtrasi model polutan *Methylene Blue* (MB) menggunakan membran sel telur (ES, *Eggshell*) yang diperoleh dari cangkang telur yang direndam dalam larutan asam asetat. Pada uji filtrasi, 5 mg/L larutan MB dilewatkan membran dengan bantuan tekanan sebesar 3,4 atm. Hasil uji berupa volume permeat yang mengalir melalui membran dan penurunan konsentrasi permeat dibandingkan dengan konsentrasi MB awal. Konsentrasi permeat hasil filtrasi ditentukan menggunakan spektrofotometer UV-Vis melalui pengukuran penurunan absorbansi. Hasil pengujian menunjukkan molekul MB dapat dipisahkan dari air dengan menggunakan tiga lembar membran ES dengan nilai permeabilitas $3,64 \times 10^{-5}$ darcy dan nilai koefisien rejeksi rata-rata sebesar 30,6%.

Kata kunci: membran sel telur (ES), methylene blue (MB), filtrasi, permeabilitas, koefisien rejeksi

Abstract. Membrane filtration is a method that is widely used for wastewater treatment with a principle of water separation and purification. In this paper, we report the results of the filtration experiment of pollutant model of Methylene Blue (MB) using eggshell membranes (ES) obtained from eggshells soaked in acetic acid solution. In the filtration experiment, 5 mg/L of MB solution was flowed through the ES membrane with the help of a pressure of 3.4 atm. The results of the filtration experiment are shown in form of permeate volume that flow through the ES membrane and a decreasing of permeate concentration. The concentration of permeate was determined using a UV-Vis spectrophotometer by observed a decreasing of its absorbance. We found that MB molecules can be separated from water by using three sheets of ES membrane with a permeability value of 3.64×10^{-5} darcy and an average rejection coefficient of 30.6%.

Keywords: eggshell membrane (ES), methylene blue (MB), filtration, Permeability, rejection coefficient

1. Pendahuluan

Kelangkaan air bersih yang disebabkan oleh pencemaran limbah pewarna sintetis menyebabkan kebutuhan teknologi penjernihan air yang efisien, hemat biaya dan ramah lingkungan. Teknologi penjernihan air sangat diperlukan untuk menjamin tersedianya pasokan air bersih. Ada banyak usaha yang dilakukan untuk pemurnian air tercemar limbah pewarna seperti menggunakan metode degradasi fotokatalitik [1], adsorpsi [2], membran filtrasi [3].

Ada banyak material yang sudah disintesis seperti bahan oksida logam, bahan berbasis karbon, dan bahan berbasis polimer, berturut-turut sebagai bahan fotokatalitik, adsorben, dan membran. Membran sel telur (*eggshell*, ES) adalah

salah satu bahan alam (biomaterial) yang banyak dikaji sebagai bahan adsorben polutan warna [4, 5, 6].

Membran ES, yang merupakan salah satu lapisan dari kulit telur yang berada di antara albumen dan permukaan dalam kulit telur, tersusun dari serat protein sehingga membentuk membran semipermeable yang tidak larut dalam air dengan luas permukaan yang besar. Membran kulit telur memiliki beberapa keunggulan diantaranya murah, mudah diperoleh, ramah lingkungan, tidak beracun dan mudah dimodifikasi melalui berbagai proses sintesis untuk melengkapi kelemahan sifat kimianya. Keunggulan tersebut membuat membran ES banyak diaplikasikan dalam berbagai bidang teknik seperti material, listrik, biomedis dan lingkungan [5].

Membran ES juga memiliki beragam gugus fungsi seperti hidroksil, tiol, karboksil, amino dan amida [7]. Adanya beragam gugus fungsi tersebut membuat membran ES berpotensi digunakan sebagai adsorben, terutama untuk penghapusan berbagai bahan kimia organik dan anorganik dalam air limbah [6, 7]. Pada banyak publikasi yang telah dilaporkan, membran ES yang digunakan sebagai adsorben polutan warna umumnya dikeringkan dan digerus terlebih dahulu sebelum dicampurkan dengan polutan warna [7, 8, 9].

Metoda adsorpsi menggunakan membran ES sudah cukup baik dalam menurunkan polutan warna, namun metode adsorpsi dianggap masih kurang efisien karena metoda tersebut bersifat statik. Pada metode adsorpsi, setelah proses adsorpsi masih dibutuhkan tahapan lanjutan yaitu penyaringan untuk memisahkan material pengadsorpsi dari permeat hasil adsorpsinya.

Filtrasi membran merupakan salah satu metode pengolahan air limbah yang bersifat dinamis, yang dengan satu langkah, langsung menghasilkan permeat (produk hasil saringan). Filter membran juga dapat mencegah pembentukan dan penyebaran bakteri dan virus, serta menghilangkan partikel, kekeruhan, dan sedimen dari air. Prinsip kerja membran adalah dengan menahan partikel yang memiliki ukuran lebih besar dari ukuran pori membran dan meloloskan partikel yang memiliki ukuran lebih kecil dari pori membran. Filtrasi membran memiliki beberapa keunggulan dibandingkan dengan metode lainnya karena prosesnya tidak memerlukan bahan kimia tambahan, konsumsi energi rendah, proses dapat dijalankan pada suhu rendah, mudah ditingkatkan kapasitasnya, tidak membutuhkan kondisi ekstrim dan fleksibel.

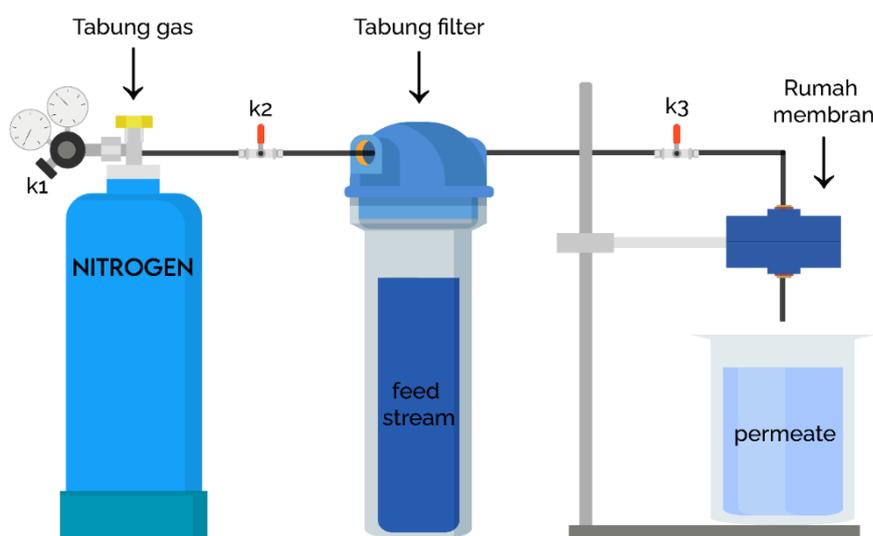
Berbeda dengan yang biasa dilakukan dan yang sudah dilaporkan sebelumnya, dalam penelitian ini membran ES tidak digerus halus melainkan dimanfaatkan dalam bentuk lembaran untuk digunakan sebagai filter guna menyaring polutan *methylene blue* (MB). Adanya gugus hidrofilik pada membran ES yang dapat mengadsorpsi polutan, diharapkan proses adsorpsi berlangsung bersamaan dengan proses filtrasi

2. Metode Penelitian

Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah cangkang telur ayam negeri yang diambil bagian membrannya, asam asetat glasial (CH_3COOH) untuk melarutkan cangkang telur, ethanol sebagai media penyimpanan membran telur supaya terhindar dari mikroorganisme, bubuk MB sebagai model polutan untuk uji filtrasi, dan aquades sebagai pelarut.

Membran ES dipisahkan dari cangkang kulit telur melalui perendaman menggunakan pelarut asam asetat dengan konsentrasi 15% selama 30 menit. Pada proses tersebut, kalsium karbonat (CaCO_3) yang terdapat pada cangkang telur akan terlarut, sehingga membran yang terdapat pada bagian dalam kulit telur dapat dipisahkan dengan mudah. Lapisan membran tersebut diambil menggunakan pinset, kemudian dibilas dengan aquades untuk menghilangkan sisa asam asetat pada membran. Membran tersebut selanjutnya disimpan di dalam wadah tertutup berisi ethanol dan diletakkan dalam lemari penyimpanan dengan temperatur 25°C (T) agar terhindar dari serangan mikroorganisme.

Eksperimen filtrasi dilakukan dengan menggunakan setup peralatan filtrasi seperti yang diperlihatkan pada Gambar 1. Peralatan filtrasi tersebut terdiri dari tabung reservoir yang berfungsi sebagai wadah larutan MB, katub 1 berfungsi untuk mengalirkan gas dari tabung nitrogen guna mengontrol tekanan pada proses filtrasi, statif sebagai penopang rumah membran, katub 2 berfungsi untuk mengalirkan gas dari tabung nitrogen menuju tabung reservoir, katub 3 berfungsi untuk mengalirkan larutan MB dari tabung reservoir menuju rumah membran, rumah membran sebagai tempat memasang membran pada proses filtrasi, gelas ukur sebagai tempat menampung permeat hasil filtrasi.



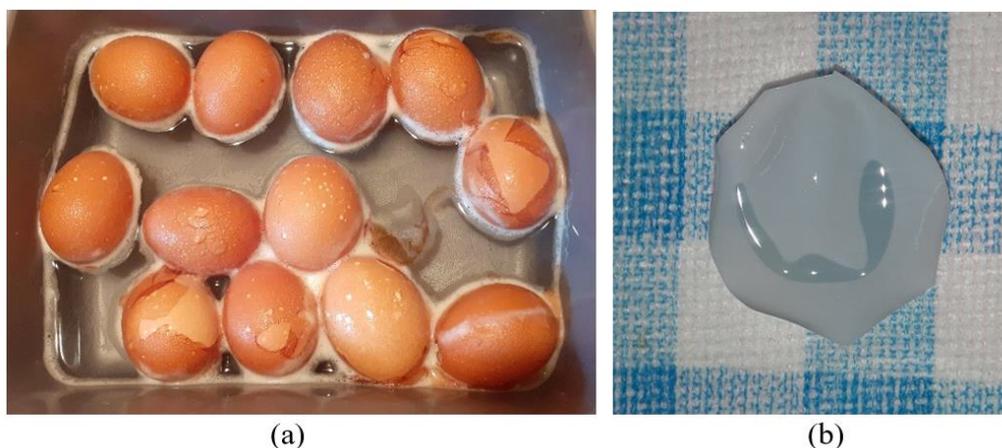
Gambar 1. Diagram peralatan uji filtrasi dengan menggunakan membran ES

Uji filtrasi larutan MB oleh membran ES diawali dengan memasukkan 1000 mL larutan MB konsentrasi 5 mg/L ke dalam tabung reservoir. Kemudian membran ES dipasangkan pada rumah membran (*membran holder*). Saat pemasangan membran ES perlu dipastikan bahwa posisi membran tersebut sudah tepat sehingga tidak terjadi kebocoran. Setelah itu tekanan tabung nitrogen diatur sebesar 3,4 atm dan buka katub pertama. Kemudian katub kedua dibuka, sehingga tekanan masuk ke dalam tabung reservoir yang akan mendorong larutan menuju rumah membran sehingga terjadi proses filtrasi larutan MB oleh membran ES. Setelah itu, katub ketiga dibuka sehingga larutan MB hasil penyaringan (permeat) keluar dan ditampung di dalam gelas ukur. Volume permeat (V_{Permeat}) diukur untuk setiap waktu penyaringan. Larutan MB dan permeat yang dihasilkan pada berbagai selang waktu dikarakterisasi menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada rentang

panjang gelombang 500 nm sampai dengan 750 nm. Konsentrasi MB yang tersisa pada permeat ditentukan dengan menggunakan kurva kalibrasi.

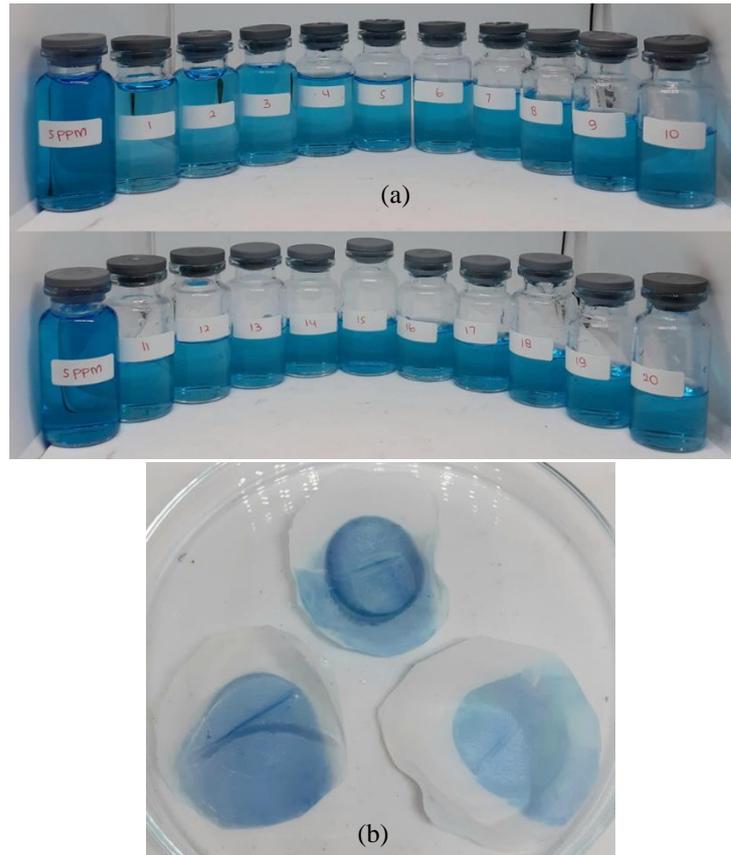
3. Hasil dan Pembahasan

Membran ES yang didapatkan dari cangkang telur ayam diperlihatkan pada Gambar 2. Pemisahan membran dari cangkang telur menggunakan asam asetat akan lebih mudah melalui perendaman dibandingkan tanpa perendaman. Hal ini dikarenakan asam asetat dikategorikan sebagai zat asam lemah yang memiliki kemampuan untuk merusak beberapa zat seperti kalsium yang merupakan komponen utama penyusun cangkang telur. Saat cangkang telur direndam dalam larutan asam asetat, kalsium karbonat akan bereaksi dengan asam asetat membentuk garam kalsium karbonat, sehingga kalsium pada cangkang telur akan melunak dan terlepas dari membran.



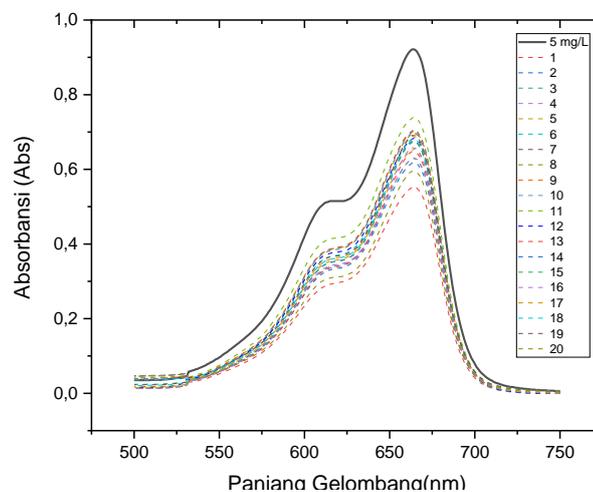
Gambar 2. Proses perendaman cangkang telur dalam larutan asam asetat 15% (a) dan membran ES yang dihasilkan setelah proses perendaman dalam asam asetat (b)

Hasil filtrasi berupa permeat yang keluar dari membran dan ditampung yang volumenya diukur sebagai fungsi waktu. Hasil ini mengindikasikan tiga lembar membran ES yang dibuat dapat digunakan sebagai membran filtrasi. Permeat hasil filtrasi menggunakan membran ES menunjukkan adanya sedikit perubahan warna dibandingkan larutan MB sebelum mengalami filtrasi seperti diperlihatkan pada Gambar 3 (a). Larutan dalam botol dengan label angka 1 sampai dengan 20 adalah permeat yang dicuplik pada setiap selang waktu 10 menit. Adanya penurunan nilai konsentrasi MB pada permeat sejalan dengan adanya molekul MB yang terserap oleh membran ES seperti terlihat pada Gambar 3(b).



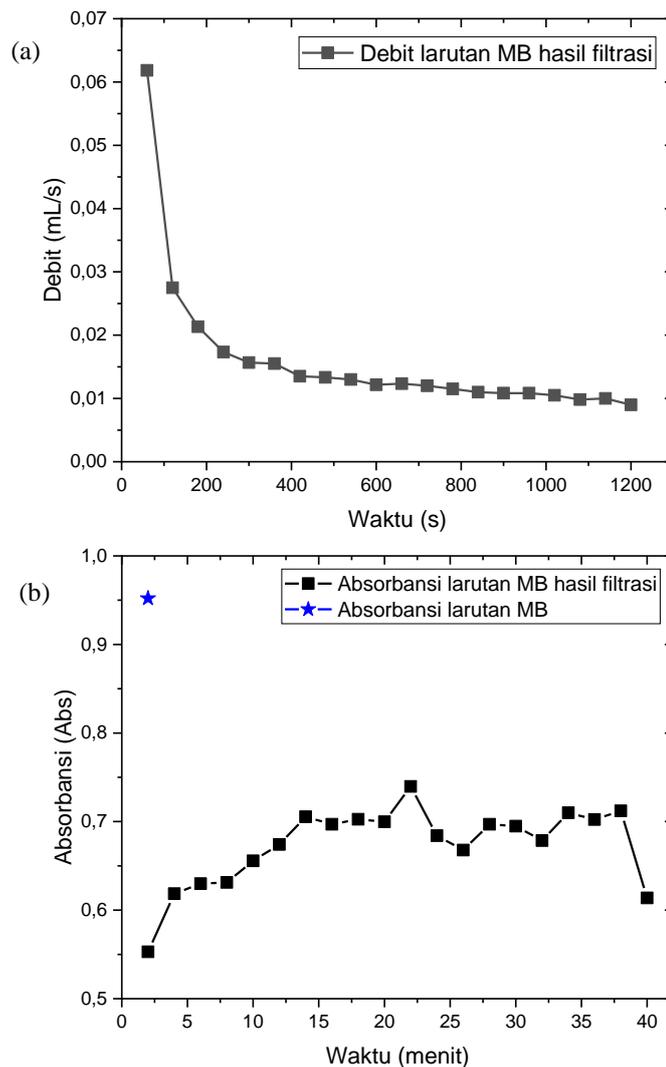
Gambar 3. Larutan MB hasil filtrasi pada setiap selang waktu tertentu (a) dan tampilan permukaan membran ES setelah digunakan pada uji filtrasi (b)

Pada Gambar 4 diperlihatkan spektrum UV Vis dari permeat hasil filtrasi yang penampakan visualnya diperlihatkan pada Gambar 3(a) yang diukur pada rentang panjang gelombang sebesar 500 nm sampai dengan 750 nm. Pada gambar tersebut tampak bahwa absorbansi permeat lebih kecil dibanding dengan konsentrasi larutan MB sebelum difiltrasi. Hal tersebut mengindikasikan telah terjadi pengurangan konsentrasi larutan MB pada proses filtrasi menggunakan membran ES.



Gambar 4. Spektrum absorbansi larutan MB hasil filtrasi

Hasil filtrasi menggunakan membran ES menunjukkan adanya penurunan konsentrasi MB. Hasil ini sangat menarik mengingat ukuran molekul MB sangat kecil yang mana dimensinya sekitar 1,4 nm x 0,6 nm [10] dibandingkan dengan porositas dari membran ES yang dalam orde mikron. Berkurangnya konsentrasi MB mengindikasikan adanya adsorpsi MB oleh membran ES. Tanpa adsorpsi, molekul MB akan lolos semua sehingga tidak akan terjadi pengurangan konsentrasi MB. Hasil eksperimen ini telah menunjukkan bahwa membran ES dapat digunakan sebagai filter dalam proses filtrasi membran walaupun hasil filtrasi baru mencapai penurunan sebesar 40 %, belum sebaik performa membran GO yang dapat menurunkan konsentrasi MB hingga 90 % jika digunakan sebagai filter [11].



Gambar 5. Debit permeate melalui membran (a) dan absorbansi permeate hasil filtrasi menggunakan tiga lembar membran ES (b)

Karakteristik hasil filtrasi MB dengan menggunakan membran ES diperlihatkan pada Gambar 5 berupa data aliran dan data absorbansi permeate. Pada Gambar 5(a) diperlihatkan data perubahan volume permeate terhadap perubahan waktu (debit) yang terjadi pada proses filtrasi sebagai fungsi waktu. Grafik tersebut mengkonfirmasi bahwa tiga lembar membran ES yang digunakan sebagai filter

pada uji filtrasi dapat menghasilkan aliran sehingga larutan uji dapat melewati membran ES. Semakin lama waktu filtrasi, debit yang mengalir terlihat makin kecil. Dari Gambar 5.a, debit permeate pada filtrasi akhir dapat diestimasi sebesar 36 ml/jam. Hal ini mungkin diakibatkan oleh penyumbatan pori-pori membran ES oleh molekul MB yang teradsorpsi oleh permukaan membran. Nilai debit aliran saat filtrasi dapat digunakan untuk menghitung permeabilitas membran dengan menggunakan persamaan (1).

$$\kappa = Q \left(\frac{\eta L}{A} \right) \left(\frac{1}{P} \right) \quad (1)$$

Pada persamaan tersebut κ adalah permeabilitas membran (darcy), Q adalah laju aliran fluida (cm^3/s), η adalah viskositas larutan uji (cP), A adalah luas permukaan membran (cm^2), L adalah ketebalan membran (cm), P adalah tekanan (atm).

Dengan menggunakan nilai debit aliran saat filtrasi waktu pertama dan viskositas larutan uji MB didekati dengan nilai viskositas aquades pada suhu 25°C yaitu sebesar 0,899 pa.s didapatkan nilai permeabilitas 3 lembar membran ES sebesar $3,64 \times 10^{-5}$ darcy. Nilai permeabilitas ini menggambar kecepatan aliran fluida yang dapat menembus permukaan membran.

Pada Gambar 5(b) diperlihatkan plot antara absorbansi permeate hasil filtrasi pada panjang gelombang 664 nm terhadap perubahan waktu saat pencuplikan sampel. Pada gambar tersebut tampak bahwa nilai absorbansi permeate tersebut langsung turun sekitar 40% pada saat pencuplikan sampel pertama dibandingkan dengan absorbansi larutan MB 5 mg/L. Akan tetapi ketika waktu pencuplikan diperpanjang, nilai absorbansi permeate naik kembali dibandingkan dengan hasil filtrasi pertama. Hal ini mungkin diakibatkan terjadi proses pencucian kembali sehingga molekul MB yang semula telah terserap oleh membran ES kembali masuk ke dalam permeate saat proses filtrasi lanjutan.

Data perubahan konsentrasi larutan uji akibat proses filtrasi dipergunakan untuk menentukan koefisien rejeksi membran (R) dengan menggunakan persamaan (2). Parameter C_0 menyatakan konsentrasi larutan MB awal (mg/L) dan C_n menyatakan konsentrasi larutan MB akhir (mg/L).

$$R = \left(\frac{C_0 - C_n}{C_0} \right) * 100\% \quad (2)$$

Dengan menggunakan kurva kalibrasi, nilai konsentrasi permeate hasil filtrasi dapat ditentukan dari data absorbansi. Perhitungan koefisien rejeksi membran ES terhadap larutan MB sebagai fungsi waktu fitrasi menggunakan persamaan (2) diperlihatkan pada Tabel 1. Nilai koefisien rejeksi rata-rata untuk filtrasi larutan MB menggunakan tiga lembar membran ES adalah sebesar 30,6%.

Tabel 1. Koefisien rejeksi membran ES yang dihitung dari perubahan konsentrasi larutan MB hasil filtrasi setiap selang waktu tertentu

No.	Waktu (s)	Absorbansi MB akhir (Abs)	Konsentrasi MB awal Co (mg/L)	Konsentrasi MB akhir Cn (mg/L)	Konsentrasi MB teradsorp ESM (mg/L)	Koefisien rejeksi Rn (%)	Koefisien rejeksi rata-rata Rn (%)
1	60	0,5491		2,8566	2,1212	42,6131	
2	120	0,6108		3,2051	1,7727	35,6124	
3	180	0,6216		3,2657	1,7121	34,3949	
4	240	0,6229		3,2732	1,7045	34,2427	
5	300	0,6458		3,4020	1,5757	31,6554	
6	360	0,6632		3,5005	1,4772	29,6770	
7	420	0,6927		3,6672	1,3106	26,3288	
8	480	0,6847		3,6217	1,3560	27,2419	
9	540	0,6901		3,6520	1,3257	26,6332	
10	600	0,6874	4,9778	3,6369	1,3409	26,9376	30,5969
11	660	0,7250		3,8490	1,1288	22,6763	
12	720	0,6726		3,5535	1,4242	28,6116	
13	780	0,6390		3,3639	1,6138	32,4212	
14	840	0,6660		3,5163	1,4615	29,3604	
15	900	0,6640		3,5050	1,4728	29,5871	
16	960	0,6490		3,4203	1,5574	31,2876	
17	1020	0,6780		3,5840	1,3938	28,0001	
18	1080	0,6710		3,5445	1,4333	28,7936	
19	1140	0,6800		3,5953	1,3825	27,7734	
20	1200	0,5890		3,0818	1,8960	38,0892	

4. Kesimpulan

Membran ES dapat dihasilkan dari kulit telur melalui perendaman dalam asam asetat konsentrasi 15% selama 30 menit. Hasil uji filtrasi menggunakan 3 lembar membran ES untuk menyaring larutan MB dengan konsentrasi 5 mg/L pada tekanan 3,4 atm berhasil menurunkan konsentrasi MB. Membran ES sebanyak tiga lembar dapat digunakan untuk menyaring molekul MB dengan nilai permeabilitas $3,64 \times 10^{-5}$ darcy dan nilai koefisien rejeksi rata-rata 30,6% serta debit permeat sebesar 36 mL/jam.

Ucapan Terima Kasih

Penelitian ini didanai oleh Proyek Penelitian Dasar Unggulan Perguruan Tinggi (PDUPT) nomor kontrak 1207/UN6.3.1/PT.00/2021 tanggal 9 Maret 2021.

Daftar Pustaka

1. M.A. Rauf, Meetani, A. Khaleel, and A. Ahmed, Photocatalytic degradation of Metilen biru using a mixed catalyst and product analysis by LC/MS. *Chemical Engineering Journal* 157 (2010), 373.
2. Y.H. Liu, X.H. Cao, R. Hua, Y.Q. Wang, Y.T. Liu, C. Pang and Y. Wang, Selective adsorption of uranyl ion on ion-imprinted chitosan/PVA cross-linked hydrogel. *Hydrometallurgy*, 104 (2010). 150.
3. E. O. Ezugbe, S. Rathilal, *Membrane Technologies in Wastewater Treatment: A Review*, *Membranes* 10 (2020), 89
4. A. O. Adegbenjo, L. Liu and M. O. Ngad, Non-Destructive Assessment of Chicken Egg Fertility, *Sensors*, 20 (2020), 5546.
5. S. Park, K. S. Choi, D. Lee, D. Kim, K. T. Lim, K-H Lee, H. Seonwoo, J. Kim, Eggshell membrane: Review and impact on engineering, *Biosystems Engineering* 151 (2016), 446
6. A. Mittal, R.K. Soni, J. Mittal, Applications of egg shell and egg shell membrane as adsorbents: A review, *Journal of Molecular Liquids* 223 (2016), 376
7. W-T. Tsai, K-J. Hsien, H-C. Hsu, C-M. Lin, K-Y Lin, C-H. Chiu, Utilization of Ground Eggshell Waste as an Adsorbent for the Removal of Dyes from Aqueous Solution, *Bioresource Technology* 99 (2008) 1623.
8. M. Arami, N. Y. Limaee, N. M. Mahmoodi, Evaluation of the adsorption kinetics and equilibrium for the potential removal of acid dyes using a biosorbent, *Chemical Engineering Journal* 139 (2008), 2
9. X. He, D. Yang, X. Zhang, M. Liu, Z. Kang, and C. Lin, Waste Eggshell Membrane-Templated CuO-ZnO Nanocomposites with Enhanced Adsorption, Catalysis and Antibacterial Properties for Water Purification, *Chemical Engineering Journal* 369 (2019), 621
10. J. De Souza Macedo, N.B. da Costa Júnior, L.E. Almeida, E.F. da Silva Vieira, A.R. Cestari, I. de Fátima Gimenez, N.L. Villarreal Carreno, L.S. Barreto, Kinetic and calorimetric study of the adsorption of dyes on mesoporous activated carbon prepared from coconut coir dust. *J. Colloid Interface Sci.* 298 (2006), 515
11. H. Kalita, H. Tyagi and M. Aslam, Surface-tailored graphene oxide paper: an efficient filter for dye pollutants, *Environ. Sci.: Water Res. Technol.*, 6 (2020), 963

PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI STRUKTUR DAN MORFOLOGI LAPISAN ZnO:Al/GO SUBMICRON-RODS SEBAGAI MATERIAL AKTIF FOTOKATALIS

ANNISA NUR RAHMAWATI*, NABILAH PUTRI UTAMI, SRI SURYANINGSIH,
AYI BAHTIAR, ANNISA APRILIA

¹ *Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km.21 Jatinangor 45363, Sumedang, Jawa Barat*

*email : annisanurrahmawati8@gmail.com

Abstrak. Fotokatalis merupakan reaksi perpaduan antara fotokimia dan katalis yang dapat digunakan sebagai aplikasi penjernihan air. Dalam upaya untuk meningkatkan kemampuan fotokatalitik dari senyawa ZnO, dilakukan penambahan dopan Al dan senyawa GO pada proses sintesis. Tahapan pertama pembuatan lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO dibuat melalui 2 tahapan, yaitu proses pelapisan *seed layer* dengan prekursor $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ dan $AlCl_3$ 0,5 % massa (wt%) sebagai dopan. Tahapan kedua adalah proses penumbuhan *rods* dengan prekursor $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ serta 0,5 wt% $AlCl_3$ dan 0,5 wt% GO sebagai material dopan. Berdasarkan hasil karakterisasi SEM lapisan ZnO:Al/GO menunjukkan adanya penurunan ukuran partikel akibat pengaruh doping Al serta pertumbuhan *submicron-rods* yang tidak beraturan akibat adanya perilaku *self-attraction* antar batang (*rods*). Penambahan senyawa GO (terdispersi di air) pada proses sintesis mampu meningkatkan ukuran *rods* dibandingkan ZnO murni. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh perubahan pH larutan prekursor, dimana pH larutan GO cenderung bersifat basa. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa seluruh sampel lapisan memiliki struktur kristal *hexagonal wurtzite* dengan arah kristal dominan terhadap sumbu-c. Seluruh sampel tersebut kemudian diuji fotokatalitiknya dengan menggunakan larutan uji yang mengandung senyawa *Methylene blue* (MB). Untuk mengetahui kinetika degradasi senyawa MB, dilakukan pengukuran spektrum absorbansi setiap rentang waktu tertentu menggunakan spektrometer UV-Vis. Berdasarkan hasil uji fotokatalis diketahui bahwa kandungan MB terdegradasi secara eksponensial sebagai fungsi waktu *polynomial* orde 2. Diketahui bahwa lapisan ZnO:Al/GO memiliki kemampuan mendegradasi MB sebanyak 1,9 mikrogram/mg dalam waktu uji 300 menit dibawah penyinaran lampu UV.

Kata kunci: fotokatalis, ZnO, dip-coating, self-assembly, methylene blue

Abstract. Photocatalyst is a combination reaction between photochemical and catalyst to be used in water purification applications. To increase the photocatalytic ability of ZnO, Al and GO were used as dopants. Preparation of ZnO, ZnO: Al, ZnO:Al/GO and ZnO: GO layers were prepared in 2 steps, firstly is seed layer preparation using $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ and 0.5 (wt%) of $AlCl_3$ as precursor and dopant, respectively. Secondly, is growing ZnO rods using $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ as a raw material, 0.5 (wt%) $AlCl_3$ and 0.5 (wt%) GO as dopant materials. Based on SEM characterization, the addition of Al dopant can decrease the particle size and shows irregular growth of submicro-rods due to self-attraction behavior between rods. The addition of GO compound (dispersed in water) during synthesis process increases the rods size compared to pure ZnO. These phenomena probably caused by changes in pH precursor solution became more basic, due to the pH value of GO solution tends to basic. The XRD characterization results for all samples shows hexagonal wurtzite crystal structure with preferred dominantly c-axis orientation. The photocatalytic activity was investigated by using Methylene blue (MB) solution. To determine the degradation kinetics of MB by involved each catalyst materials,

the absorbance spectra were measured within a certain time interval by UV-Vis Spectrometer. The MB concentration was degrading exponentially as a function of the second order polynomial. It is known that ZnO: Al/GO layer has ability to degrade of 1.9 micrograms/mg MB in 300 minutes under irradiation by UV lamp.

Keywords: photocatalyst, ZnO, dip-coating, self-assembly, methylene blue

1. Pendahuluan

Pengolahan limbah merupakan teknologi yang penting untuk kehidupan manusia dan lingkungan secara global. Limbah cair merupakan permasalahan yang cukup besar, terutama limbah yang dihasilkan dari industri tekstil [1]. Air yang tercemar, memiliki karakteristik khusus yang dapat dibedakan dari air bersih, baik secara fisik, kimia maupun biologi yang dapat ditunjukkan dengan berbagai indikator/tanda bahwa air dalam keadaan tercemar [2]. Untuk mengatasi pencemaran air tersebut, terdapat beberapa metode yang dilakukan untuk menjernihkan air [3], diantaranya adalah dengan menggunakan material fotokatalis di bawah iradiasi sinar matahari. Tantangan terbesar dari metode ini adalah mendapatkan material fotokatalis yang dapat bekerja dibawah rentang spektrum radiasi matahari yang lebih luas [4]. Fotokatalis melibatkan reaksi antara fotokimia dan katalis. Dimana proses reaksi fotokimia melibatkan suatu cahaya (*foton*), serta katalis yang mampu mempercepat fotoreaksi melalui interaksinya [5].

Senyawa metal oksida ZnO sering digunakan sebagai material fotokatalis karena memiliki fotosensitivitas yang tinggi, karakteristik mekanik yang baik, biaya produksi yang cukup rendah, dan aman bagi lingkungan [6]. Peran ZnO sebagai fotokatalis bergantung pada beberapa faktor antara lain ukuran partikel, bentuk/morfologi, dan konsentrasi larutan pada saat uji fotokatalis. Beberapa penelitian menunjukkan bahwa pengembangan semikonduktor pada suatu adsorben dapat meningkatkan aktivitas fotokatalitik dalam proses degradasi senyawa organik maupun logam berat [7]. Semikonduktor ZnO memiliki keuntungan yang mampu menyerap spektrum matahari dan kuantum cahaya lebih banyak dibandingkan dengan TiO₂ [8]. Material ZnO memiliki jarak celah pita yang lebih besar (3,37 eV) daripada TiO₂ sebesar 3,2 eV [9], sehingga hanya bisa diaplikasikan dibawah sinar UV ($\lambda < 387\text{nm}$). Logam Al umum digunakan sebagai metal *dopant* pada ZnO, karena menghasilkan lapisan dengan transparansi dan konduktivitas yang tinggi [10]. Selain itu, pemberian *doping* Al juga diketahui dapat mereduksi ukuran partikel ZnO sehingga dapat meningkatkan aktifitas luas permukaan menjadi lebih besar. Berdasarkan penelitian sebelumnya, penambahan dopan Al pada ZnO paling efektif dalam meningkatkan sifat listrik dan optik [4].

Graphene merupakan material karbon 2D yang memiliki tebal satu atom karbon [11] dengan luas permukaan spesifik $2630\text{ m}^2\text{g}^{-1}$ [12] serta memiliki sifat mekanik, termal, listrik dan optik yang baik [13]. Senyawa karbon dalam bentuk Grafit yang kemudian diubah menjadi oksida grafit merupakan prekursor *graphene oxide* (GO) [14]. Keuntungan utama dari GO adalah harganya yang murah dengan *raw material* yang melimpah dan tersedia di alam. GO merupakan material yang banyak digunakan berkaitan dengan karakteristik unik dari material *graphene*, namun memiliki sifat yang kurang baik seperti luas permukaan spesifik yang rendah, memiliki kerapatan gugus oksigen yang tinggi, dan bersifat isolator [15]. Xu dkk menjelaskan bahwa *graphene-hybridized* ZnO fotokatalis menunjukkan peningkatan aktivitas fotokatalitik untuk degradasi pewarna organik, sebesar 4 kali dari ZnO biasa. Penambahan Al dan senyawa GO diharapkan dapat meningkatkan

kemampuan degradasi senyawa polutan *Methylene blue* (MB) dan mampu mereduksi ukuran partikel ZnO sehingga luas permukaan spesifik dapat ditingkatkan. Penambahan senyawa GO diharapkan dapat meningkatkan proses degradasi polutan karena GO merupakan material adsorban dan mampu mereduksi proses rekombinasi muatan sehingga proses fotokatalisnya terjadi secara lebih cepat.

Oleh karena itu, pada penelitian ini dikaji karakteristik fotokatalis lapisan tipis ZnO yang didoping oleh atom Al dan GO. Karakteristik fotokatalis tersebut kemudian dikaitkan dengan struktur dan morfologi lapisan ZnO:Al/GO yang dihasilkan. Pada penelitian ini fotokatalis ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO dibuat dalam bentuk lapisan menggunakan metode *sol-gel* dengan teknik *dip-coating* untuk pelapisan *seed layer* dan *self assembly* untuk penumbuhan ZnO *rod*. Senyawa ZnO:Al/GO hasil sintesis kemudian dikarakterisasi struktur dan morfologinya menggunakan XRD dan SEM-EDS. Sedangkan pengujian sifat fotokatalitik dilakukan dengan menggunakan larutan metil biru dan diamati perubahan kandungan MB menggunakan Spektrofotometer UV-Vis.

2. Metode Penelitian

2.1. Pembuatan Lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO

Pembuatan lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO dilakukan melalui beberapa tahapan. Tahapan pertama adalah preparasi lapisan tipis ZnO:Al *seed layer* menggunakan metode *sol-gel* dengan teknik pelapisan *dip-coating*. Bahan yang digunakan adalah *Zinc acetate dihydrate* ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) sebagai prekursor, *Methoxyethanol* sebagai pelarut dalam pembuatan ZnO *seed layer*, *Aluminium chloride* (AlCl_3) sebagai dopan dan *Diethanolamine* (DEA) sebagai stabilizer/ligan.

Tahapan kedua adalah sintesis ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO menggunakan metode *self assembly* untuk penumbuhan struktur *submicron-rods*. Bahan yang digunakan adalah *Zinc nitrate hexahydrate* $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Aldrich, 98%), *deionized (DI) water*, *Aluminium chloride* AlCl_3 , *Graphene oxide* (GO) dan *hexamethylenetetramine* (HMTA, Aldrich, 99%). Kemudian lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO dikarakterisasi XRD, SEM dan EDS agar diketahui struktur kristal, morfologi lapisan dan komposisi dari setiap unsur yang terdapat pada lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO *submicron-rods* tersebut.

2.2. Pengujian Fotokatalitik

Tahap pengujian fotokatalis dilakukan dengan menggunakan larutan *Methylene blue* sebagai larutan uji. *Methylene blue* dilarutkan dengan menggunakan DI Water sehingga didapat larutan sebanyak $0,33 \mu\text{M}$ atau setara dengan $1,07 \text{ ppm}$. Larutan uji kedua adalah dengan konsentrasi 10^{-6} mol/L ($0,033 \mu\text{M}$). Kemudian larutan diambil sebanyak 42 ml dan dituangkan pada petridis kaca, lalu lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO *submicron-rods* disimpan dalam petridis kaca tersebut dengan posisi lapisan menghadap keatas. Setelah itu lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO disinari oleh lampu UV, sampai kandungan *Methylene blue* terurai yang ditandai dengan larutan yang semakin jernih. Untuk mengamati laju degradasinya sampel diambil pada menit ke 60, 180 dan dihentikan sampai dengan penyinaran 300 menit. Selanjutnya diamati spektrum absorbansi larutan uji menggunakan *Spectroscopy UV-Vis*.

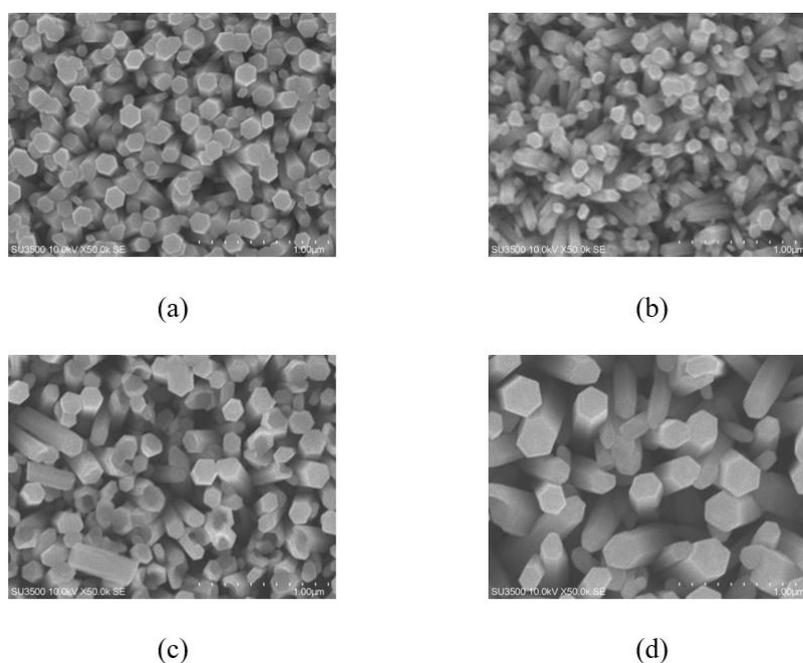
3. Hasil dan Pembahasan

Setelah lapisan selesai dibuat, sampel kemudian ditimbang agar diketahui massanya. Penimbangan tersebut dilakukan untuk menentukan konsentrasi *Methylene Blue* yang digunakan saat uji fotokatalis. Berikut massa *submicron-rods* yang diperoleh.

Tabel 1. Massa hasil lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO

Sampel	Massa Sampel (mg)
ZnO	1,57
ZnO:Al	2,75
ZnO:Al/GO	12,8
ZnO:GO	16,7

Tabel 1 diatas diperoleh dari hasil *submicron-rods* dengan bentuk heksagonal sempurna. Dari hasil tersebut terlihat bahwa ukuran rods dari ZnO dengan *doping* Al lebih kecil dibandingkan dengan ZnO:Al/GO dan ZnO:GO. Hasil karakteriasi SEM ditunjukkan pada Gambar 1.



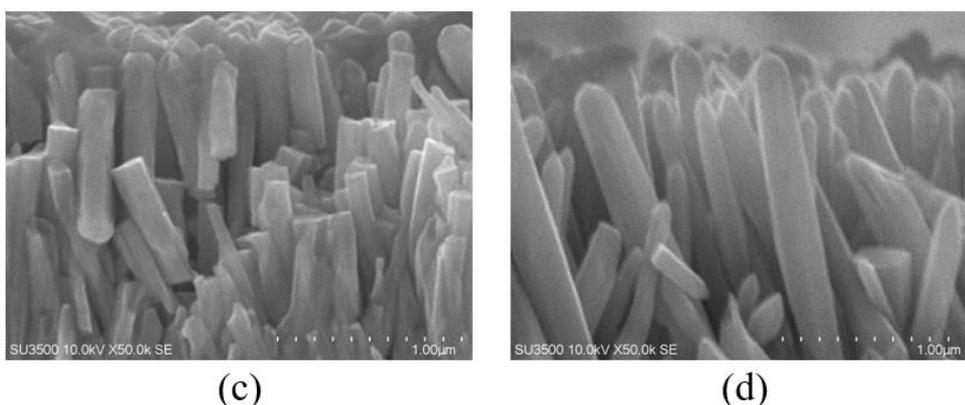
Gambar 1. Hasil karakterisasi SEM lapisan (a)ZnO (b) ZnO:Al (c) ZnO:Al/GO dan (d) ZnO:GO

Pada Gambar 1 menunjukkan morfologi dari (a) ZnO, (b) ZnO:Al, (c) ZnO:Al/GO dan (d) ZnO:GO dengan waktu penumbuhan 180 menit. Dari hasil karakterisasi tersebut dapat terlihat bahwa lapisan ZnO memiliki bentuk yang seragam dengan diameter rata-rata *rods* sebesar 148 nm.

Sampel yang didoping dengan Al menunjukkan ukuran yang lebih kecil dan rapat dibandingkan dengan sampel ZnO, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO. Bila dibandingkan dengan hasil pengukuran XRD pada diameter ZnO, pengaruh adanya Al pada lapisan ZnO:Al mampu memperkecil ukuran kristal ZnO *submicron-rods*, hal ini disebabkan karena atom Al memiliki diameter atomik yang lebih kecil apabila

dibandingkan dengan atom Zn, sehingga ketika atom Al menempati posisi atom Zn akan mereduksi ukuran kristal/partikel ZnO. Keberadaan atom Al juga mempengaruhi pertumbuhan *rods*, disebabkan karena adanya perilaku *self-attraction* yang menyebabkan pertumbuhan *submicron-rods* menjadi tidak beraturan dengan penjajaran *rods* yang cenderung lebih rapat [10].

Lapisan ZnO:Al/GO menunjukkan bentuk ukuran *rods* yang lebih besar dan tinggi dibandingkan dengan sampel lapisan ZnO:Al dengan aspek rasio (L/d) sebesar 13.07 (Tabel 1). Pada hasil SEM ZnO:Al/GO juga terlihat bahwa pertumbuhan *rods* tidak beraturan akibat adanya pengaruh *doping* Al yang menyebabkan adanya perilaku *self-attraction*. Pada sampel ini juga terjadi peningkatan diameter dan tinggi *submicro-rods* apabila dibandingkan dengan *doping* ZnO:Al saja. Lapisan ZnO yang didoping dengan GO menunjukkan bentuk yang tidak seragam dan ukuran *rods* sampel yang lebih besar. Akibat besarnya diameter lapisan dan tinggi *rods* tersebut, hasil uji fotokatalisnya menunjukkan penurunan nilai absorbansi yang lebih cepat dibandingkan dengan sampel lainnya. Ukuran diameter, tinggi dan aspek rasio yaitu perbandingan antara tinggi dengan diameter (L/d) dari lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO *submicron-rods* dapat terlihat pada tabel 1. Pada Gambar 2 diperlihatkan hasil SEM untuk *cross-section* dari lapisan (a) ZnO, (b) ZnO:Al, (c) ZnO:Al/GO dan (d) ZnO:GO.



Gambar 2. Hasil SEM cross-section (a) ZnO, (b) ZnO:Al, (c) ZnO:Al/GO dan (b) ZnO:GO

Pada lapisan ZnO:Al/GO, *submicron-rods* memiliki penjajaran yang tidak beraturan, sedangkan untuk lapisan ZnO:GO, *submicron-rods* yang terbentuk berukuran besar dengan tinggi lebih besar dibandingkan sampel lainnya dengan penjajaran yang cenderung lebih teratur. Ukuran *rods* yang lebih besar pada sampel dengan *doping* GO dipengaruhi akibat pH larutan penumbuhnya, dimana GO terdispersi stabil pada larutan dengan pH 7-11 atau berada pada pH basa [16]. Penambahan senyawa GO yang memiliki pH basa meningkatkan jumlah OH pada larutan penumbuh. Meningkatnya jumlah OH tersebut menyebabkan pembentukan partikel ZnO menjadi lebih banyak dan cepat sehingga berefek pada ukuran (dimensi) dan massa ZnO yang dihasilkan.

Karakterisasi EDS digunakan untuk mengetahui kandungan unsur pada lapisan ZnO:Al/GO dan ZnO:GO. Berdasarkan hasil EDS yang diperlihatkan pada tabel 2 terlihat bahwa masing-masing sampel mengandung komposisi unsur Zn, O, Al dan

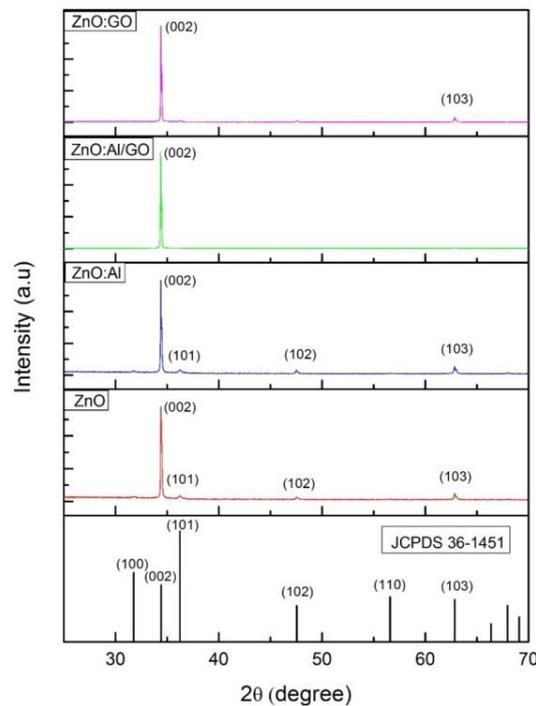
C. Atom Zn dan O berasal dari molekul ZnO yang terbentuk dari hasil sintesis sedangkan atom C berasal dari *Graphene oxide*. Unsur Zn pada sampel ZnO:Al/GO memiliki persen berat relatif sebesar 51,29%, unsur O sebesar 48,7%, unsur Al 0% dan unsur C 0%. Pada sampel ZnO:GO unsur Zn memiliki persentase berat relatif sebesar 52,43%, unsur O 47,56 % dan unsur C 0,01%. Perbandingan antara atom Zn dan O pada setiap sampel ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Hasil Karakterisasi EDS

	Elemen	% Massa	% Atom	Zn : O : C : Al
ZnO:Al/GO	C	0	0	1 : 0,95 : 0 : 0
	O	18,86	48,7	
	Zn	81,14	51,29	
	Al	0	0	
	Elemen	% Massa	% Atom	Zn : O : C
ZnO:GO	C	0	0,01	1 : 0,90 : 0
	O	18,16	47,56	
	Zn	81,83	52,43	

Dalam perbandingan secara stoikiometri, nilai rasio atom Zn:O seharusnya adalah 1:1. Perbedaan nilai rasio perbandingan dengan rasio stoikiometri ini dapat disebabkan karena terdapat *defect* yang terjadi selama proses sintesis berlangsung. Nilai rasio atomic yang paling mendekati adalah pada sampel dengan pemberian dopan Al. Pada sampel ZnO:Al/GO, atomik% dari unsur Al dan C tidak terdeteksi. Hal ini disebabkan karena rendahnya konsentrasi Al dan C yang diberikan. Begitu pula pada sampel ZnO:GO, dimana atomic% unsur C hanya terdeteksi sekitar 0,01%. Hal tersebut disebabkan karena batas deteksi EDS adalah sebesar 0,1 (wt%), sehingga EDS tidak dapat mendeteksi material dengan konsentrasi dibawah 0,01 (wt%) [18].

Karakterisasi XRD digunakan untuk mengetahui struktur kristal lapisan dengan melihat puncak difraksi dan indeks miller dari sampel. Karakterisasi ini dilakukan dengan menggunakan sumber Cu dengan panjang gelombang $\lambda = 1,54060 \text{ \AA}$ dengan interval 2θ pada 5° - 70° . Hasil dari karakterisasi ini diperoleh spektrum XRD yang menyatakan hubungan antara 2θ dengan intensitas difraksi. Untuk menentukan kesesuaian struktur kristal yang terbentuk, dilakukan pencocokan data 2θ difraktogram hasil analisis dengan data dari JCPDS (*Joint Committee Powder Diffraction Standar*). Pola difraksi standar yang digunakan sebagai pembanding adalah JCPDS No. 36-1451. Karakterisasi XRD dilakukan pada sampel lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO *submicron-rods submicron-rods*. Pola XRD dari lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO *submicron-rods* ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Hasil karakterisasi XRD sampel ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO

Dari grafik hasil XRD yang diperoleh, dari keempat sampel menunjukkan pola difraksi yang sama, dimana puncak dengan intensitas tertinggi berada pada bidang hkl (002). Berikut perbandingan data bidang hkl *Wurtzite* dan data 2θ dari JCPDS No. 36-1451 dan data yang diperoleh, dapat terlihat pada Tabel 3 dibawah ini.

Tabel 3. Data perbandingan hkl dan 2θ Wurtzite JCPDS No. 36-1451 dan hasil percobaan

JCPDS No 36-1451	ZnO	ZnO:Al	ZnO:Al/GO	ZnO:GO
(100)	31,769°	(100)	-	(100)
(002)	34,421°	(002)	34,429°	(002)
(101)	36,252°	(101)	36,272°	(101)
(102)	47,538°	(102)	47,577°	(102)
(103)	62,862°	(103)	62,855°	(103)

Dari hasil pola XRD pada Gambar 3. terlihat bahwa intensitas puncak difraksi sangat tajam terdapat pada bidang hkl (002). Hal ini menunjukkan bahwa semua lapisan yang terbentuk dominan mengarah pada sumbu-c. Keberadaan puncak (100), (101), (102) dan (103) juga menunjukkan bahwa sampel tersebut memiliki struktur *hexagonal wurtzite*. ZnO dengan struktur *hexagonal wurtzite* memiliki ukuran yang dipengaruhi oleh kisi a dan c. Untuk mengetahui ukuran kristal, dapat digunakan persamaan *Debye Scherrer*. Dimana penentuan ukuran ini merujuk pada puncak-puncak utama dari pola difraktogram. Persamaan *Debye Scherrer* dirumuskan dengan:

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (1)$$

Dalam hal ini, D merupakan ukuran (diameter) kristal, λ adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan, θ_β adalah sudut Bragg, β adalah FWHM (*Full Width Half Minimum*) atau salah satu puncak yang dipilih dan k adalah konstanta material yang nilainya kurang dari 1 ($k \approx 0,9$). Hasil perhitungan kemudian ditampilkan pada Tabel 4. Parameter kisi kristal c dan a dari struktur kristal *wurtzite* ZnO dapat dihitung dengan menggunakan persamaan dibawah ini:

$$c = \frac{\lambda}{\sin\theta} \quad (2)$$

$$a = \sqrt{\frac{1}{3} \frac{\lambda}{\sin\theta}} \quad (3)$$

Tabel 4. Efisiensi masing-masing sampel

Efisiensi degradasi/waktu	ZnO	ZnO:Al	ZnO:Al/GO	ZnO:GO	UV
0	0%	0%	0%	0%	0%
60	76%	26%	38%	49%	26%
180	90%	52%	75%	86%	28%
300	90%	63%	88%	95%	32%

Ukuran kristal ZnO pada orientasi bidang hkl (002) adalah sebesar 90,18 nm. Dengan adanya penambahan dopan Al mampu mereduksi ukuran kristal menjadi 80,94 nm. Penurunan intensitas difraksi pada sampel dengan penambahan Al sebagai dopan berkaitan pula dengan penurunan ukuran kristal. Atom Al memiliki diameter atomik yang lebih kecil apabila dibandingkan dengan atom Zn, sehingga atom Al menempati posisi atom Zn [10]. Diameter ion Al^{+3} (0,039 nm) memiliki nilai yang lebih kecil daripada Zn^{2+} (0,06 nm), sehingga ketika atom Al menempati lokasi Zn dalam sebuah kisi kristal maka ukuran kristal tersebut akan tereduksi [17].

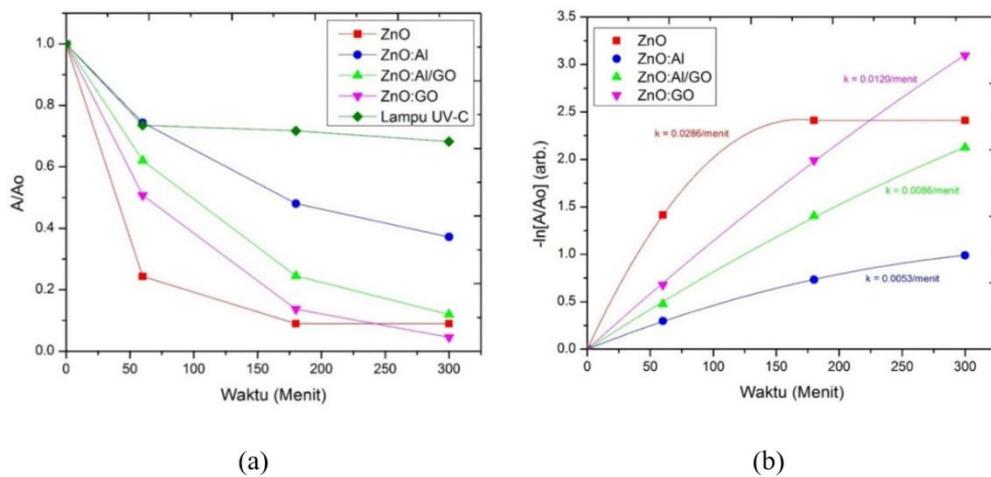
Pada sampel ZnO:Al/GO dan ZnO:GO juga terjadi penurunan puncak 2 θ dibandingkan dengan ZnO murni dan terlihat pula adanya kenaikan diameter kristal pada kedua sampel tersebut. Tidak teramatinya puncak difraksi GO disebabkan karena rendahnya konsentrasi GO yang diberikan serta kemungkinan tereduksinya senyawa GO menjadi rGO. Hasil XRD tersebut juga menunjukkan bahwa tidak terdapat *impurity* yang terdeteksi pada keempat sampel tersebut. Untuk mengetahui keberadaan dopan (Al dan GO) pada lapisan yang dihasilkan perlu dikarakterisasi lebih lanjut, salah satunya adalah dengan karakterisasi spektrum Raman. Jika ternyata keberadaan Al dan GO tetap tidak terdeteksi, maka penambahan senyawa dopan $AlCl_3$ dan larutan GO hanya memengaruhi proses penumbuhan ZnO rods yang berkaitan dengan perubahan kondisi pH larutan penumbuh.

Pengujian fotokatalitik dilakukan dengan menggunakan larutan uji *Methylene blue* dengan konsentrasi sebesar 10^{-5} mol/L (0,335 ppm). ZnO:Al/GO dan ZnO:GO *submicro-rods* direndam dalam larutan MB 10 mL kemudian ditambahkan Aquades sebanyak 30mL. Sampel ZnO dan ZnO:Al direndam dalam larutan MB yang konsentrasinya telah diencerkan sebanyak 10x dari larutan yang telah dibuat. Untuk sampel ZnO dan ZnO:Al, konsentrasi larutan uji yang digunakan berbeda dengan

larutan sebelumnya, hal ini disebabkan karena katalis yang diperoleh dari hasil sintesis memiliki massa yang lebih kecil.

Selanjutnya lapisan yang sudah terendam larutan MB disinari dibawah lampu UV. Berdasarkan pengamatan, MB dapat terdegradasi selama 300 menit. Pengambilan sampel dilakukan pada rentang waktu 60 menit, 180 menit, 300 menit. Kemudian larutan MB tersebut di karakterisasi dengan *Spectroscopy* Uv-Vis untuk melihat kandungan MB yang tersisa. Dalam penelitian ini, proses peluruhan atau degradasi dari MB lebih fit ketika menggunakan eksponensial berpangkat *polynomial* orde 2 dengan persamaan 4.

$$-\ln \left[\frac{A}{A_0} \right] = kt \quad (4)$$



Gambar 4. (a) grafik penurunan konsentrasi MB dibawah penyinaran lampu UV dan (b) grafik konstanta degradasi MB dibawah penyinaran lampu UV

Dari grafik konstanta laju degradasi fotokatalitik yang diperlihatkan oleh Gambar 4, diperoleh nilai k pada sampel ZnO adalah 0,0286/menit, ZnO:Al 0,0053/menit, ZnO:Al/GO 0,0086/menit dan ZnO:GO 0,0120/menit. Pada waktu 60 menit pertama, laju degradasi MB belum terlihat signifikan, hal ini disebabkan karena sampel ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO membutuhkan waktu untuk mencapai titik kesetimbangan untuk mendegradasi MB. Namun dibandingkan sampel lainnya sampel ZnO lebih cepat mendegradasi MB pada 60 menit pertama tersebut. Dari percobaan dapat terlihat bahwa laju degradasi pada sampel ZnO:Al memiliki waktu degradasi yang lebih lama dibandingkan sampel yang lain dengan nilai konstanta laju degradasi yang kecil. Hal ini disebabkan karena *rods* yang terbentuk pada *seed layer* terlalu rapat sehingga proses degradasi fotokatalisnya lebih lama. Pada penelitian ini, dihitung juga nilai efisiensi degradasi untuk masing-masing sampel pada waktu 300 menit, yang ditunjukkan pada Tabel 4 dibawah ini.

Sampel ZnO:Al yang juga didoping dengan GO menunjukkan peningkatan aktivitas fotokatalitik sehingga laju degradasinya meningkat dibandingkan sampel ZnO:Al. Selain itu, sampel ZnO *submicron-rods* yang didoping dengan GO menunjukkan proses degradasi lebih cepat dibandingkan dengan sampel ZnO:Al/GO.

Berdasarkan hasil SEM, penambahan dopan GO terhadap ZnO menyebabkan struktur *submicron-rods* yang tidak beraturan dan terjadi peningkatan diameter rods, sehingga mampu meningkatkan aktivitas fotokatalis karena luas permukaan aktifnya meningkat.

Berdasarkan efisiensi dari masing-masing sampel dapat terlihat bahwa sampel ZnO:GO memiliki nilai efisiensi tertinggi yaitu 95%, kemudian sampel ZnO dengan efisiensi 90%, kemudian sampel ZnO:Al/GO yaitu 88% dan terakhir, sampel ZnO:Al yang memiliki nilai efisiensi terendah dengan nilai 63%. Kemudian dihitung juga efisiensi degradasi MB dengan lampu UV tanpa menggunakan katalis yaitu diperoleh efisiensi sebesar 32%. Hal tersebut menyatakan bahwa lampu UV juga berperan dalam pendegradasian konsentrasi MB dan dengan penambahan katalis terbukti mampu menambah efisiensi fotokatalitik.

Perbandingan antara nilai efisiensi degradasi tidak dapat dibandingkan karena berkaitan dengan perbandingan antara MB dengan serbuk material katalis yang berbeda, apabila ingin dibandingkan, maka nilainya harus seragam. Perbandingan MB dengan serbuk material katalis untuk sampel ZnO adalah 0,003, untuk sampel ZnO:Al adalah 0,002, untuk sampel ZnO:Al/GO adalah 0,004 dan sampel ZnO:GO adalah 0,003. Dari perbandingan tersebut dapat diketahui bahwa perbandingan terbesar adalah pada sampel ZnO:Al/GO. Nilai ini kemudian digunakan untuk menghitung massa MB yang mampu tereduksi oleh 1 mg katalis pada waktu 300 menit. Nilai tersebut kemudian dikurangi dengan nilai yang dihasilkan oleh UV agar diperoleh hasil akhir nilai massa MB yang menunjukkan kemampuan material dalam mereduksi MB pada waktu 300 menit.

Koefisien laju degradasi berkaitan dengan kecepatan reaksi/aktivitas fotokatalitik yang bergantung terhadap waktu. Kemungkinan besar dipengaruhi oleh karakteristik permukaan dan situs aktif yang ada pada material fotokatalis. Kemampuan degradasi yang terbaik diperankan oleh ZnO:Al/GO yang memiliki aspek rasio tertinggi, yaitu memiliki perbandingan antara panjang dan diameter batang yang besar. Lapisan ZnO:Al/GO memiliki kemampuan mendegradasi MB sebanyak 1,9 mikrogram/mg dalam waktu 300 menit.

4. Kesimpulan

Lapisan ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO telah berhasil disintesis dengan menggunakan metode *sol-gel* dengan teknik *dip-coating* untuk pelapisan *seed layer* dan *self assembly* untuk penumbuhan lapisan *submicron-rods*. Hasil karakterisasi SEM menunjukkan *submicron-rods* yang terbentuk pada lapisan ZnO memiliki bentuk *rods* yang *homogen*, cukup teratur dan cukup rapat. Lapisan ZnO:Al dan ZnO:Al/GO memiliki bentuk *rods* yang *non-homogen*, tidak beraturan dan cukup rapat. Sedangkan, lapisan ZnO:GO menunjukkan *rods* yang *non-homogen*, cukup teratur tetapi kurang rapat. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa lapisan ZnO, ZnO:Al, ZnO:Al/GO dan ZnO:GO memiliki struktur kristal *hexagonal wurtzite* dengan arah kristal dominan terhadap sumbu-c. Penambahan dopan Al mampu mereduksi ukuran partikel ZnO dan menyebabkan adanya *self-attraction*. Penambahan dopan GO terhadap ZnO *submicron-rods* menyebabkan bentuk *rods* menjadi tidak homogen dan terjadi peningkatan diameter *rods*. Nilai efisiensi degradasi tidak dapat dibandingkan karena berkaitan dengan perbandingan antara

MB dengan serbuk material katalis yang berbeda. Selain itu, Koefisien laju degradasi berkaitan dengan kecepatan reaksi/aktivitas fotokatalitik yang bergantung terhadap waktu. Pada dasarnya, aktivitas fotokatalitik kemungkinan besar dipengaruhi oleh karakteristik permukaan dan situs aktif yang ada pada material fotokatalis. Kemampuan degradasi yang terbaik diperankan oleh ZnO:Al/GO yang memiliki aspek rasio tertinggi, yaitu memiliki perbandingan antara panjang dan diameter batang yang besar. Lapisan ZnO:Al/GO memiliki kemampuan mendegradasi MB sebanyak 1,9 mikrogram/mg dalam waktu 300 menit.

Daftar Pustaka

1. T.N. Sucahya, N. Permatasari, A.B.D. Nandiyanto. Review: Fotokatalis untuk Pengolahan Limbah Cair. *Jurnal Integrasi Proses* Vol. 6 (2016), No. 1. 1 – 15.
2. Suyasa, W. Budiarsa. *Pencemaran Air dan Pengolahan Air Limbah*. Udayana University Press (2015).
3. C. Kencanawati, *Sistem Pengelolaan Air Limbah*. Universitas Udayana (2016).
4. Yuda, Hanum, H. Susanto. Analisis Sifat Optik Lapisan Tipis Bilayer ZnO/TiO₂ yang Dideposisikan Menggunakan Metode Sol-Gel Spray Coating dan Aplikasinya Sebagai Fotodegradasi Zat Warna. *Youngster Physics Journal* ISSN : 2303 – 7371. Vol. 3, No. 3, Juli (2014), Hal 223-230.
5. R.E. Kirk and V.R. Othmer *Encyclopedia of Chemical Technology*, vol.11 Flavor Characterization to Fuel Cells, 4th ed., John Wiley & Sons Inc., New York (1994).
6. J. Yang and S. Gunasekaran. Electrochemically reduced graphene oxide sheets for use in high performance supercapacitors. *Carbon* N. Y., (2013) 51, 36-44.
7. S. Mondal, S. R. Bhattacharyya, P. Mitra. Effect of Al doping on microstructure and optical band gap of ZnO thin film synthesized by successive ion layer adsorption and reaction. *Pramana*, 80, 2 (2013), 315-326.
8. Wulandari, I. Oktavia. S. Wardhani, Dinar Purwonugroho. Sintesis dan Karakterisasi Fotokatalis ZnO Pada Zeolit. *Kimia.Student Journal*, Vol. 1, No. 2 (2014), Pp. 241-247, Universitas Brawijaya Malang.
9. R. Hutabarat, Sintesis dan Karakteristik Fotokatalis Fe²⁺-ZnO Berbasis Zeolit Alam. Skripsi. Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Depok (2012).
10. A. Aprilia, H. Fernando, L. Safriani, A. Bahtiar, R. Hidayat. Pengaruh Dopan Al Terhadap Struktur dan Morfologi ZnO Nano-rod dan Penggunaannya Sebagai Fotoanoda Pada Sel Surya DSSC. *Prosiding SNIPS* (2017).
11. Y. Shen, L. Lei, X. Zhang, M. Zhou, Y. Zhang. Effect of various gases and chemical catalysts on phenol degradation pathways by pulsed electrical discharges. *Journal of Hazardous Materials*, 150, 3 (2008), 713-722.
12. M.D. Stoller, S. Park, Y. Zhu, J. An, and R.S. Ruoff, Am. Graphene based ultracapacitors. *Chem.Soc.*, 8(10) (2008)., 3498-3502.
13. S. Pei and H. Cheng. Synthesis of Graphene Oxide (GO) by Modified Hummers Method and Its Thermal Reduction to Obtain Reduced Graphene Oxide (rGO)*. *Carbon* N. Y., Vol. 11 (2011)., 1-19.
14. S. Park and R.S. Ruoff, Chemical methods for the production of graphene. *Nat. Nanotechnology*, 4 (2009), 217-224.
15. H. Choi, S. Jung, J. Seo, and D.Wook. Graphene for energy conversion and storage in fuel cells and supercapacitors. *Nano Energy*, 1(4) (2012). 534-551.

16. Yu, Zhiqiang, S.C. Steven, Chuang. The effect of Pt on the photocatalytic degradation pathway of methylene blue over TiO₂ under ambient conditions. *Applied Catalysis B: Environmental* 83 (2008), 277–285.
17. F. Ajala, A. Hamrouni, A. Houas, H. Lachheb, B. Megna, L. Palmisano, F. Parrino. The Influence of Al Doping on The Photocatalytic Activity of Nanostuctured ZnO: The Role of Adsorbed Water 445 (2018). 376-384.
18. J. Goldstein, D. Newbury, D. Joy, C. Lyman, P. Echlin, E. Lifshin et al.. *Scanning electron microscopy and x-ray microanalysis*. 3rd ed. New York: Springer (2003).