

## Peningkatan Kecekapan Pemisahan Air Menggunakan $g\text{-C}_3\text{N}_4$ yang Disinar Gama (Improvement of Water Splitting Efficiency using Gamma Irradiated $g\text{-C}_3\text{N}_4$ )

NURUL AIDA MOHAMED, JAVAD SAFAEI, AZNAN FAZLI ISMAIL, MOHAMAD FIRDAUS MOHAMAD NOH,  
MOHD FAIRUZ SOH, MOHD ADIB IBRAHIM, NORASIKIN AHMAD LUDIN & MOHD ASRI MAT TERIDI\*

### ABSTRAK

Dalam kajian ini, kesan sinar gama ke atas bahan semikonduktor  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  kGy (0.1 kGy dan 0.5) dibincangkan dan dibandingkan dengan sampel yang tidak disinari untuk melihat perbezaannya. Bahan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  disintesis dari urea melalui proses pempolimeran haba pada suhu  $520^\circ\text{C}$ . Struktur dan morfologi  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  dianalisis dengan menggunakan pembelauan Sinar-X (XRD), spektroskopi transformasi Fourier inframerah (FT-IR), mikroskop pengimbas elektron pancaran medan dengan spektroskopi tenaga sinar-X (FESEM-EDX), spektroskopi cahaya nampak - ultraungu (UV-Vis) dan ketumpatan arus (LSV). Sinar gama telah mengubah struktur ikatan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  dan mengurangkan sela jalur iaitu daripada 2.80 eV kepada 2.72 eV. Di samping itu, sampel  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  yang disinari pada 0.1 kGy menghasilkan prestasi lima kali ganda lebih tinggi iaitu daripada  $3.59 \mu\text{Acm}^{-2}$  kepada  $14.2 \mu\text{Acm}^{-2}$  pada 1.23 V lawan Ag/AgCl dalam larutan elektrolit 0.5 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  (pH7). Kesimpulannya, keputusan kajian menunjukkan bahan semikonduktor yang dirawat dengan sinar gama berpotensi untuk meningkatkan fotoelektrokimia (PEC) pemisahan air.

Kata kunci:  $g\text{-C}_3\text{N}_4$ , pemisahan air; sela jalur tenaga; sinar gama

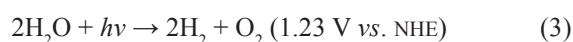
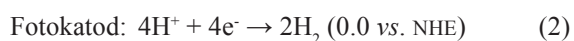
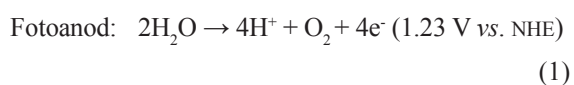
### ABSTRACT

In this study, the effect of gamma radiation on  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  semiconductor material (0.1 and 0.5 kGy) was discussed and compared to the non-irradiated sample in order to investigate the difference. The  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  material was synthesised from urea by thermal polymerization at the temperature of  $520^\circ\text{C}$ . The structure and morphology of the  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  were analysed by X-ray diffractometer (XRD), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), field emission scanning electron microscope with energy dispersive X-ray spectroscopy (FESEM-EDX), ultraviolet- visible (UV-Vis), profilometer and photocurrent density (LSV). The finding indicates that gamma radiation has changed the bonding structure of the  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  and reduces the optical band gap energy from 2.80 to 2.72 eV. In addition, the irradiated  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  sample at 0.1 kGy has five times better performance which increases from  $3.59 \mu\text{Acm}^{-2}$  to  $14.2 \mu\text{Acm}^{-2}$  at 1.23 V versus Ag/AgCl in 0.5 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  electrolyte solution (pH7). As a conclusion, this study shows that the treated semiconductor material with gamma-ray potentially to increase the photoelectrochemical efficiency.

Keywords:  $g\text{-C}_3\text{N}_4$ ; energy band gap; gamma radiation; water splitting

### PENGENALAN

Perintis Fujishima dan Honda (1972) menjalankan kajian tentang pemisahan molekul air kepada gas hidrogen dan oksigen melalui fotoelektrod  $\text{TiO}_2$ . Proses pemisahan air ini telah membuka ruang untuk penyelidik mengkaji prospek hidrogen sebagai bahan api mesra alam untuk sumber keterbaharuan. Konsep yang diguna pakai menyamai proses elektrolisis dengan molekul air dipisahkan kepada gas oksigen dan hidrogen pada anod dan katod melalui proses pengoksidaan dan penurunan redoks seperti (1), (2) dan (3) berikut (Zhong 2012).



Hasilnya, banyak kajian telah dijalankan oleh penyelidik di seluruh dunia untuk meningkatkan penghasilan hidrogen. Pelbagai teknik telah digunakan dalam usaha mengoptimumkan penghasilan hidrogen antaranya melalui kaedah heterosimpang, pendopan dan sel tandem. Kaedah ini dipilih kerana ia adalah praktikal, fleksibel serta mempunyai kos yang rendah. Kaedah penggunaan sinaran mengion untuk mengoptimumkan penghasilan hidrogen belum diterokai dengan meluas. Penggunaan sinar mengion telah memberi kesan optik, elektrik, sifat fizik sesuatu bahan dan juga perubahan ke atas mikrostruktur (Al-Hamdani et al. 2014). Pendedahan bahan pepejal kepada sinar mengion (e.g. sinar X dan sinar gama) boleh menghasilkan perubahan dalam sifat dan struktur mikro yang seterusnya memberi kesan kepada

sifat pepejal, elektrik dan fizikal lain sesuatu pepejal (Arshak & Kerostynska 2003).

Sinar gama juga dilaporkan mengaruh kesan daripada segi elektrik dan sifat optik ke atas  $\text{TeO}_2$  filem nipis melalui keadaan penyejatan terma (Mohil & Kumar 2013). Kajian menggunakan sinar gama terhadap filem nipis, ZnO juga dilaporkan oleh Al-Hamdani et al. (2014) menggunakan kaedah DC percikan magnetron. Hasilnya, sela jalur tenaga telah berkurang daripada 3.25 eV kepada 3.20 eV dan pertambahannya pekali penyerapan daripada 0.62 eV kepada 0.73 eV. Sinar gama juga dilaporkan memberikan kesan ke atas penyerapan spektrum dan optik sela jalur tenaga  $\text{SeO}_2$  filem nipis (Riyadh et al. 2012). Kajian menggunakan sinar gama juga telah dijalankan ke atas bahan nanopartikel seperti Ag, Ni dan Zn (Alarcón et al. 2011).

Sehubungan dengan itu, kajian ini bertujuan untuk mengkaji kesan sinar gama ke atas bahan semikonduktor  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Grafitik karbon nitrit ( $\text{g-C}_3\text{N}_4$ ) semikonduktor telah mendapat perhatian umum kerana mengandungi sumber nitrogen yang tinggi, kestabilan bahan kimia dan haba (Li et al. 2013; Zhang et al. 2014, 2010). Sifatnya yang mudah diperolehi, tidak mengandungi unsur logam dan mesra alam (melalui proses pemeluwapan dari urea, dicyandiamide atau tiourea pada suhu tinggi)  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  menjadi perhatian umum (Peng et al. 2016; Wang et al. 2012). Dalam kajian ini sampel  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  disintesis dari urea telah disebarkan dalam pelarut metanol sebelum disinari dengan sinar gama. Sampel yang telah disinari kemudiannya dikenakan ke atas permukaan filem nipis sebelum dicirikan dari segi perubahan struktur kimia, morfologi dan optik.

## BAHAN DAN KAEDAH KAJIAN

### PROSES SINTESIS DAN PENYINARAN $\text{g-C}_3\text{N}_4$

Timah oksida terdop fluorin (FTO) digunakan sebagai substrat. Sebelum pemendapan, FTO dibersihkan menggunakan aseton, etanol dan air suling ternyah ion selama 15 min dalam ultrasonik dan dikeringkan dengan aliran nitrogen. 3 gram urea (99%, Sigma Aldrich) dipanaskan pada suhu  $520^\circ\text{C}$  selama 20 min untuk menyingkirkan elemen hidrogen dan oksigen. Hasilnya, serbuk kuning halus diperolehi dan dilarutkan menggunakan air suling ternyah ion dan dibilas untuk menyingkirkan sebarang sebatian organik. Sampel dikeringkan semalaman di dalam ketuhar pada suhu  $60^\circ\text{C}$  dan metanol digunakan sebagai pelarut. Sampel kemudiannya disinarkan pada dos 0.1 kGy dan 0.5 kGy dengan sinar gama menggunakan sel gama model 220 Excel dengan sumber radioaktif kobalt-60. Pemilihan kadar dos 0.1 dan 0.5 kGy dilakukan bertujuan mengkaji kesan sinar gama terhadap bahan semikonduktor  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  pada kadar dos yang rendah dan tinggi. Sampel yang telah disinari akan dimendapkan pada filem nipis. Sebanyak 10 mikron liter larutan  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  dititiskan pada permukaan substrat FTO yang diputar dengan kelajuan 2500 rpm selama 10 s bagi membentuk satu lapisan nipis  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yang

sekata. Filem nipis yang terhasil kemudiannya, dikeringkan pada suhu  $40^\circ\text{C}$  selama 15 min bagi memastikan semua molekul alkohol telah meruap. Sampel akhirnya melalui proses sepuhlandap pada suhu  $350^\circ\text{C}$  selama 30 min pada tekanan atmosfera.

### PENCIRIAN SAMPEL

Bagi mengkaji struktur, morfologi dan sifat optik filem nipis  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yang dihasilkan, pencirian menggunakan spektroskopi inframerah-transformasi Fourier (FT-IR) (Perkin Elmer Spectrum 400 FT-IR & Spotlight 400 Imaging System), belauan sinar-X (PXRD) (Bruker /D8 Advance) dalam julat  $2\theta = 20$  hingga  $80^\circ$ . Sampel morfologi dianalisis menggunakan mikroskopi pengimbas elektron pancaran medan dengan spektroskopi tenaga sinar-X (FESEM-EDX) jenama Zeiss Model/Supra 55vp. Manakala, spektroskopi nampak-ultraungu (UV-Vis) diukur menggunakan Perkin Elmer UV Winlab 6.0.2.0738/Lambda35. 1.27.

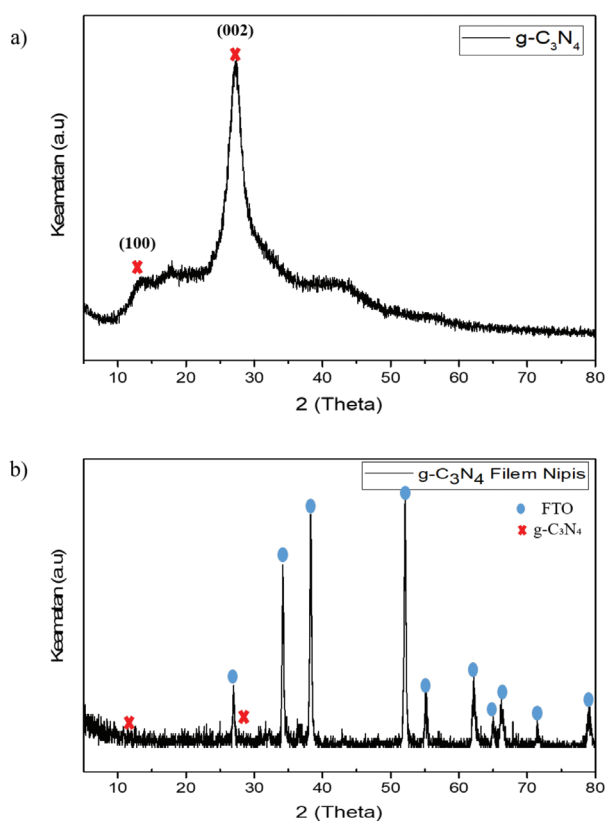
Seterusnya, untuk mengkaji pencirian fotoelektrokimia (PEC) sampel, analisis pengukuran ketumpatan arus melawan voltan (J-V) dilakukan menggunakan 3 elektrod yang terdiri daripada elektrod kerja (sampel filem nipis), elektrod pembilang (plat platinum) dan elektrod rujukan (Ag/AgCl). Pencirian PEC dikendalikan dalam bekas kuartz yang mengandungi larutan elektrolit 0.5 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  (pH7). Pengukuran dijalankan dalam keadaan gelap, bercahaya dan gelap-bercahaya. Keamatan cahaya sebanyak  $100 \text{ mWcm}^{-2}$  diukur menggunakan Solar Light Xenon lamp power supply XPS-150<sup>TM</sup> dan Autolab PGSTAT dengan perisian Nova software FRA32M model digunakan.

## KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

### KOMPOSISI DAN KEHABLURAN

Keputusan PXRD ditunjukkan pada Rajah 1(a). Sampel  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  dalam bentuk serbuk dianalisis terlebih dahulu sebelum disinarkan untuk memastikan puncak yang diinginkan berpadanan dengan sampel. Hasil analisis menunjukkan kesemua puncak berpadanan dengan heksagon karbon nitrid dengan nombor kekisi  $a = 0.4742 \text{ nm}$  dan  $c = 6.7205 \text{ nm}$  yang bertepatan dengan nombor JCPDS 87-1526. Puncak tertinggi menunjukkan  $2\theta = 27.4^\circ$  pada puncak (002) mempamerkan pembelauan struktur grafitik dengan jarak  $d = 0.326 \text{ nm}$  seperti yang dilaporkan oleh Peng et al. (2016). Selain itu, puncak  $2\theta = 13.3^\circ$  mewakili puncak pembelauan (100) menunjukkan unit bagi triazine (Jin et al. 2017; Safaei et al. 2018). Kedua-dua puncak ini menunjukkan  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  telah berjaya disintesis daripada urea dan dilarutkan dengan pelarut metanol sebelum disinarkan dengan nilai dos 0.1 kGy dan 0.5 kGy. Namun setelah larutan  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yang disinari gama dikenakan melalui salutan putar pada substrat, puncak FTO lebih dominan berbanding dengan puncak pembelauan,  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Keputusan XRD bagi  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  filem nipis ditunjukkan pada Rajah 1(b). Diameter bagi salutan putar dianggarkan sekitar  $\sim 117.1 \text{ nm}$  bagi fabrikasi filem nipis.

## ANALISIS MORFOLOGI

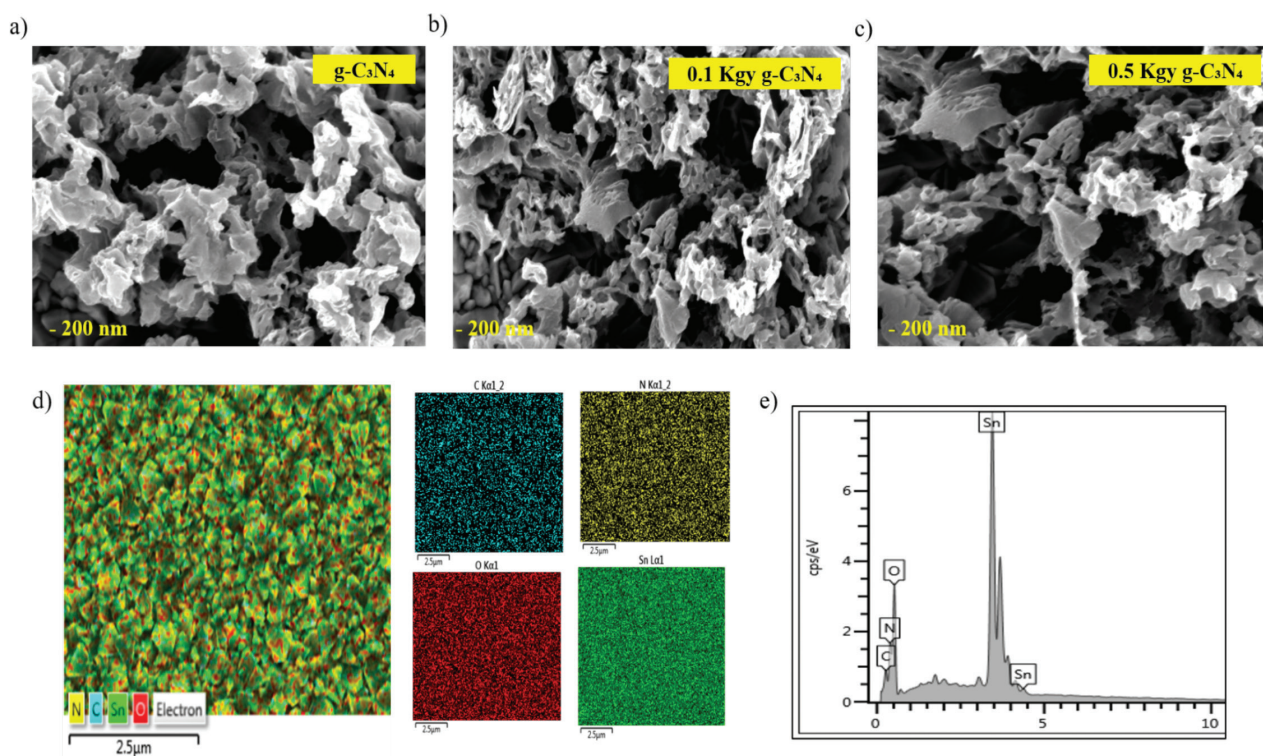


RAJAH 1. Spektrum a) PXRD dan  
b) Filem Nipis g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>

Mikrograf FESEM-EDX dipamerkan pada Rajah 2(a). Morfologi permukaan nipis g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dan kadar radiasi 0.1 kGy, 0.5 kGy dan tanpa sinar mempamerkan pembentukan mesoporous seperti 'rumpai laut' pada permukaan FTO (Mohamed et al. 2018). Hasil kajian menunjukkan tiada perbezaan ke atas g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> yang telah disinari gama. Ketebalan filem nipis dalam julat mikrometer atau nanometer bergantung dengan perubahan seperti parameter (masa, kelajuan putaran, kelikatan dan kepekatan larutan) yang dititiskan pada permukaan substrat. Kaedah penyalutan putar penting untuk memastikan g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dikenakan dengan halaju seragam di atas permukaan filem bagi meningkatkan penyerapan cahaya dan menghalang kewujudan lohong-lohong kecil di atas permukaan filem nipis (Mohd-Nasir et al. 2015). Permukaan yang berongga memberi kesan peningkatan pada luas permukaan filem nipis. Kewujudan elemen seperti C dan N pada elektrod g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> disahkan dengan keputusan EDX pada Rajah 2(e) dan Rajah 2(d) menunjukkan pemetaan taburan sekata bagi unsur C dan N di atas filem nipis. Ini penting bagi memastikan unsur g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> berselerak dengan taburan yang sekata di atas permukaan filem nipis untuk mencapai kadar penyerapan cahaya yang tinggi (Mohamed et al. 2018).

## ANALISIS PERUBAHAN STRUKTUR KIMIA

Hasil analisis spektrum FT-IR bagi sampel g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ditunjukkan dalam Rajah 3. Hasil analisis mendapati pada puncak gelombang 810 cm<sup>-1</sup> adalah mewakili unit



RAJAH 2. Morfologi permukaan filem nipis (a) g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> b) 0.1 kGy g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> c) 0.5 kGy g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>  
(d) pemetaan taburan sekata filem nipis g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> (e) spektrum EDS filem g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>



triazine (Peng et al. 2016). Manakala puncak gelombang pada nilai  $1241\text{ cm}^{-1}$ ,  $1408\text{ cm}^{-1}$  dan  $1630\text{ cm}^{-1}$  merujuk kepada mod regangan heterosikel C-N. Ini merujuk kepada pembentukan jaringan sambungan bagi ikatan C-N-C untuk struktur  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  (Wang et al. 2012). Pada puncak gelombang lebar antara  $3000\text{ cm}^{-1}$  hingga  $3600\text{ cm}^{-1}$  menghubungkan regangan N-H bagi kumpulan amina sekunder dan amina primer dengan unit s-triazine (Jin et al. 2017; Peng et al. 2016).

Hasil kajian mendapati bahan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  yang disinari dengan gama pada dos  $0.1\text{ kGy}$  mempunyai ikatan N-H pada puncak  $3200\text{ cm}^{-1}$  yang meregang dengan kuat serta mempunyai kadar penyerapan cahaya yang lebih tinggi berbanding  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  kawalan (tidak disinari). Namun,  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  yang disinari pada  $0.5\text{ kGy}$  menunjukkan puncak gelombang telah terganggu dan menyebabkan struktur ikatan kimia terkesan pada puncak  $810\text{ cm}^{-1}$ ,  $1241\text{ cm}^{-1}$ ,  $1408\text{ cm}^{-1}$ ,  $1630\text{ cm}^{-1}$  dan  $3180\text{ cm}^{-1}$ . Sinaran mengion bukan sahaja memusnahkan sesuatu bahan namun boleh juga digunakan untuk membentuk dan meningkatkan ion-ion regangan, dalam sesuatu proses tindak balas kimia. Oleh yang demikian, kesan mengion pada dos yang tinggi telah memusnahkan dan ikatan kimia seperti yang dilihat pada Rajah 4 terutamanya pada puncak  $3180\text{ cm}^{-1}$ . Sinaran mengion juga boleh digunakan untuk mengaruh perubahan struktur suatu bahan dan ia digunakan untuk mengubah saiz, struktur fasa dan sifat fizikal suatu bahan (Chang et al. 2013).

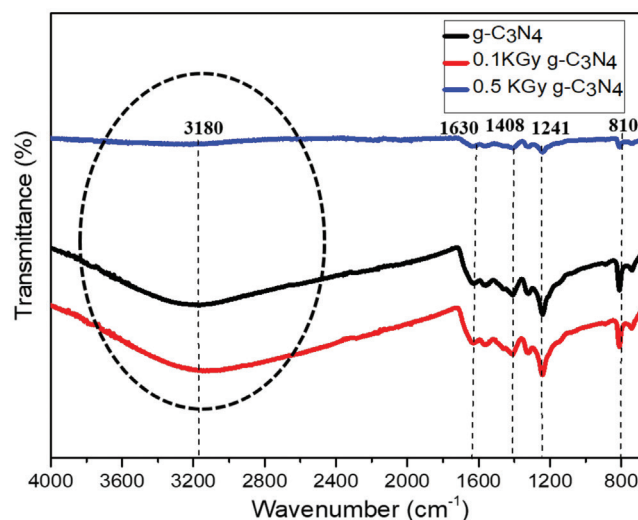
#### SIFAT OPTIK DAN SELA JALUR

Spektrum serapan bagi larutan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$ , sinar gama  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  ( $0.1\text{ kGy}$  berserta  $0.5\text{ kGy}$ ) ditunjukkan dalam Rajah 4. Kesemua sampel menunjukkan serapan maksimum pada panjang gelombang  $320\text{ nm}$  dan mewakili konjugasi ikatan karbon dan nitrid (Mohamed et al. 2018; Wang et al. 2012). Manakala untuk panjang gelombang  $230\text{ nm}$  mewakili serapan untuk amino (Peng et al. 2016). Bagi

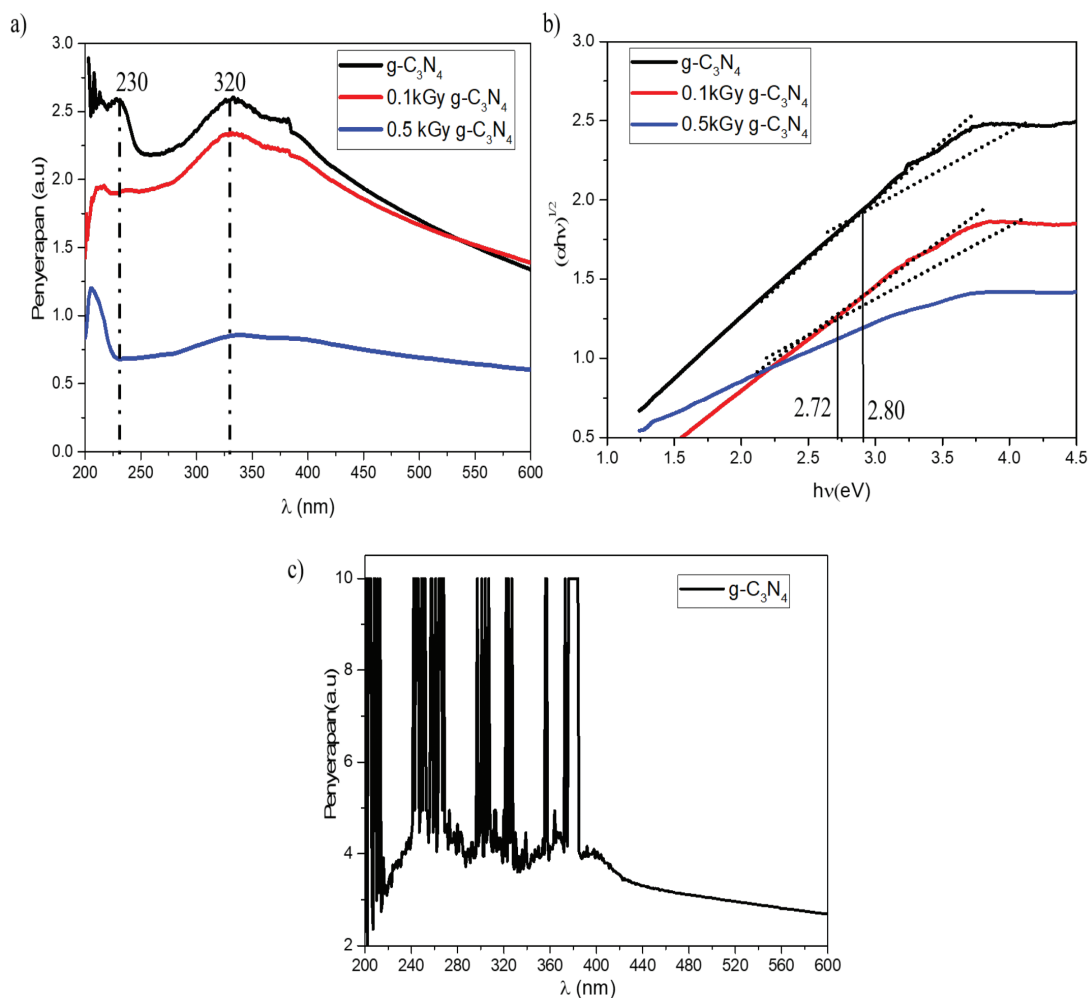
$0.5\text{ kGy } g\text{-C}_3\text{N}_4$  tidak menunjukkan sebarang serapan pada panjang gelombang  $230\text{ nm}$  dan menunjukkan sinar gama telah mengganggu ikatan  $\text{NH}_2$  dan kesannya atom hidrogen dan nitrogen terlerai. Sinaran mengion dapat digunakan untuk memulakan sesuatu tindak balas kimia yang berupaya menghasilkan sesuatu bahan terubah. Berdasarkan Rajah 4(a), sampel  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  tanpa sinar gama menunjukkan isyarat rendah kerana berlakunya penyerapan yang rendah pada ca.  $400\text{ nm}$  pada rantau cahaya nampak berbanding  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  yang disinari gama.

Namun, bagi Rajah 4(c), penyerapan cahaya untuk panjang gelombang  $320\text{ nm}$  dan  $230\text{ nm}$  dalam bentuk elektrod filem nipis tidak dapat dikesan pada panjang gelombang  $380\text{ nm}$  dan ke bawah. Oleh itu,  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  dalam bentuk larutan telah digunakan sebagai alternatif. Hasil daripada serapan ini sela jalur dianggarkan pada  $2.80\text{ eV}$  menggunakan plot Tauc pada Rajah 4(b) (Liu et al. 2011; Yang et al. 2015). Sela jalur yang dilaporkan untuk  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  adalah  $2.4\text{ eV}$  hingga  $2.80\text{ eV}$  bergantung pada keadaan persediaan yang berbeza (Huang et al. 2013; Yu et al. 2013; Zhang et al. 2012).

Kajian sebelumnya melaporkan bahawa sinar gama mempengaruhi sela jalur tenaga pada sesuatu bahan semikonduktor (Al-Hamdani et al. 2014; Arshak & Kerostynska 2003). Rajah 4(b) menunjukkan perbandingan spektrum penyerapan filem nipis bagi  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  dan disinarkan. Semakin kecil jurang tenaga dalam semikonduktor, semakin senang untuk foton diujakan daripada jalur valensi ke jalur konduksi. Hasilnya, kesan radiasi mendorong sela jalur tenaga mengecil daripada  $2.80\text{ eV}$  kepada  $2.72\text{ eV}$ . Ahmad et al. (2015) mengkaji kesan sinar mengion ke atas bahan  $\text{Cd}_5\text{Se}_{95-x}\text{Zn}_x$  daripada segi struktur dan optiknya dan merumuskan bahawa, sinaran gama telah membawa anjakan daripada segi sela jalur tenaga iaitu  $2.14\text{ eV}$  kepada  $2.06\text{ eV}$ ,  $2.19\text{ eV}$  kepada  $1.99\text{ eV}$  and  $2.25\text{ eV}$  kepada  $2.09\text{ eV}$  pada filem nipis of  $\text{Cd Se}_{95-x}\text{Zn}_x$  ( $x = 0, 2, 4$ ) dengan  $75\text{ kGy}$  dos sinar gama.



RAJAH 3. FT-IR spektrum untuk  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  dan  $g\text{-C}_3\text{N}_4$  disinarkan



RAJAH 4. a) Spektrum penyerapan cahaya  $g-C_3N_4$  dalam medium larutan, b) sela jalur tenaga  $g-C_3N_4$  dan c) penyerapan cahaya  $g-C_3N_4$  dalam medium elektrod filem nipis

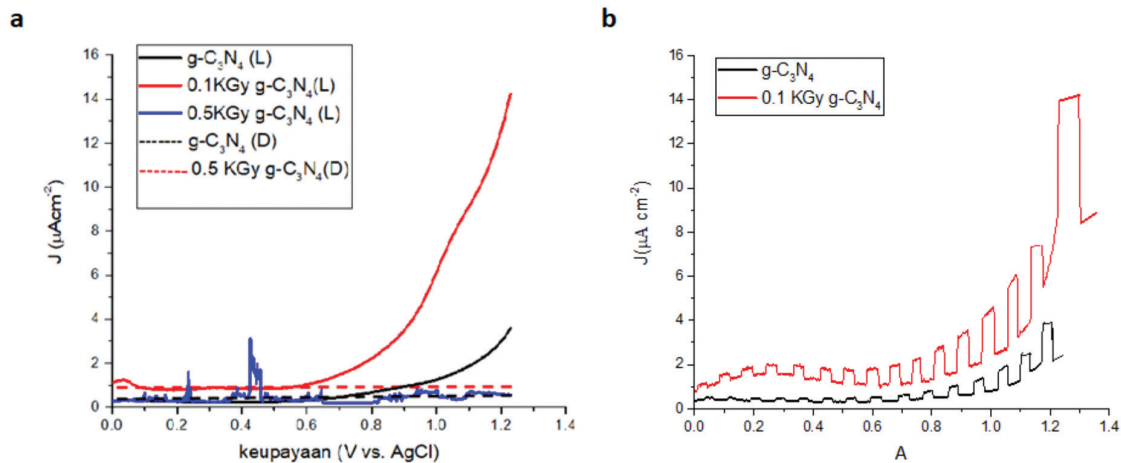
#### KETUMPATAN ARUS MELAWAN VOLTAN

Pengukuran arus melawan voltan (J-V) bagi sampel diambil dalam keadaan bercahaya (L), gelap (D) dan gelap-cahaya di bawah pencahayaan spektrum suria AM 1.5. Pengukuran dilakukan dengan mengenakan voltan keupayaan daripada 0 V hingga 1.23 V *lawan* Ag/AgCl di dalam larutan elektrolit 0.5  $Na_2SO_4$  (pH7) dengan menggunakan sistem 3 elektrod yang terdiri daripada sampel  $g-C_3N_4$  sebagai elektrod kerja, plat Platinum sebagai elektrod pembilang dan Ag/AgCl sebagai elektrod rujukan.

Tindak balas filem nipis pada pencahayaan 100  $mWcm^{-2}$  ditunjukkan dalam Rajah 5(a). Bahan  $g-C_3N_4$  yang disinari pada 0.1 kGy adalah paling tinggi iaitu 14.2  $\mu Acm^{-2}$  berbanding  $g-C_3N_4$  tanpa sinar gama, 3.59  $\mu Acm^{-2}$  1.23 V *lawan* Ag/AgCl. Ini menunjukkan bahawa bahan  $g-C_3N_4$  yang disinari dengan gama mempunyai prestasi lima kali ganda lebih tinggi berbanding  $g-C_3N_4$  yang tidak disinari. Kesannya sinar mengion membentuk radikal bebas yang mengaruh tindak balas kimia. Namun pada dos sinaran 0.5 kGy ke atas  $g-C_3N_4$  tidak lagi bertindak balas pada cahaya dan gelap. Ini disebabkan oleh kerana kuasa penembusan daripada sinar gama yang tinggi

ke atas  $g-C_3N_4$  mendorong perubahan dan pemecahan kepada struktur ikatan kimia. Hasilnya, sinaran pengion telah mengubah ikatan tindak balas kimia seperti yang dibincangkan pada Rajah 3.

Di samping itu, fotoarus yang dihasilkan oleh  $g-C_3N_4$  tersinar dan tanpa sinar menggunakan teknik putaran sangat responsif terhadap cahaya dan gelap seperti ditunjukkan pada Rajah 5(b). Pada rajah tersebut, penukaran arus dapat dilihat dalam keadaan bercahaya pada 0.1 V menandakan berlaku proses penggabungan semula antara-permukaan semikonduktor/elektrolit. Teknik putaran dilakukan untuk memastikan  $g-C_3N_4$  dikenakan dengan halaju seragam untuk menghalang kewujudan lohong-lohong di atas permukaan filem nipis. Ketumpatan fotoarus akan berkurang apabila wujudnya lohong. Justeru, pentingnya memastikan permukaan filem nipis ditutupi dengan sekata bahan  $g-C_3N_4$  untuk mencapai ketumpatan fotoarus yang tinggi. Fotoarus positif menunjukkan lohong telah bergerak ke elektrolit dan mengalami pengoksidaan. Manakala elektron pula bergerak ke litar luar menuju ke plat Platinum dan akan mengalami proses penurunan  $H^+$ .



RAJAH 5. a) Lengkung J-V diukur menggunakan larutan 0.5 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  bagi sampel  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  dan graf b) fotorespon sampel  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  dan 0.1 kGy terhadap cahaya dan tanpa cahaya

### KESIMPULAN

Hasil analisis menggunakan spektroskopi inframerah-transformasi Fourier (FT-IR), pembelauan sinar-X (XRD), mikroskopi pengimbas elektron pancaran medan dengan spektroskopi tenaga sinar-X (FESEM-EDX), spektroskopi cahaya nampak-ultraungu (UV-Vis), profilometer dan ketumpatan fotoarus (LSV) menunjukkan bahawa sinar gama telah memberi kesan pada semikonduktor,  $\text{g-C}_3\text{N}_4$ . Kesannya, berlaku perubahan kepada struktur bahan yang seterusnya meningkatkan kecekapan. Sela jalur tenaga  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  telah berkurang daripada 2.80 eV kepada 2.72 eV dan ketumpatan foto arus bagi  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yang tersinar menunjukkan prestasi lima kali ganda peningkatan berbanding  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  yang tidak disinari iaitu  $3.59 \mu\text{Acm}^{-2}$  kepada  $14.2 \mu\text{Acm}^{-2}$ . Keseluruhannya, kesan sinar gama berpotensi sebagai satu alternatif pembaharuan dalam pembuatan elektrod filem nipis untuk diaplikasikan dalam photoelektrokimia (PEC) pemisahan molekul air.

### PENGHARGAAN

Setinggi penghargaan kepada pihak Universiti Kebangsaan Malaysia (UKM) atas geran penyelidikan yang diberikan iaitu GUP-2016-089 dan GUP-2018-113 serta kakitangan pusat pengurusan penyelidikan dan instrumentasi (CRIM) dan Program Sains Nuklear, UKM yang memberikan bantuan sepanjang penyelidikan ini dijalankan.

### RUJUKAN

- Ahmad, S., Khan, M.S., Asokan, K. & Zulfeqar, M. 2015. Effect of gamma irradiation on structural and optical properties of thin films of a  $\text{Cd}_5\text{Se}_{95-x}\text{Zn}_x$ . *Int. J. Thin. Fil. Sci. Tec.* 4(2): 103-109.
- Al-Hamdani, N.A., Al-Alawy, R.D. & Saba, J.H. 2014. Effect of gamma irradiation on the structural and optical properties of ZnO thin films. *IOSR Journal of Computer Engineering (IOSR-JCE)* 16(1): 11-16.
- Alarcón, J., Ponce, S., Paraguay-Delgado, F. & Rodríguez, J. 2011. Effect of  $\gamma$ -irradiation on the growth of ZnO nanorod

- films for photocatalytic disinfection of contaminated water. *Journal of Colloid and Interface Science* 364(1): 49-55.
- Arshak, K. & Kerostynska, O. 2003. Gamma irradiation induced changes in the electrical and optical properties of tellurium dioxide thin films. *IEEE Sensors Journal* 3(6): 717-721.
- Chang, Y., Guo, Q., Zhang, J., Chen, L., Long, Y. & Wan, F. 2013. Irradiation effects on nanocrystalline material. *Front. Mater. Sci.* 7(2): 143-155.
- Dong, F., Zhao, Z., Xiong, T., Ni, Z., Zhang, W., Sun, Y. & Ho, W. 2013. *In situ* construction of  $\text{G-C}_3\text{N}_4/\text{g-C}_3\text{N}_4$  metal-free heterojunction for enhanced visible-light photocatalysis. *ACS Applied Materials & Interfaces* 5(21): 11392-11401.
- Fujishima, A. & Honda, K. 1972. Electrochemical photolysis of water at a semiconductor electrode. *Nature* 238: 37-38.
- Huang, S., Jin, Y. & Jia, M. 2013. Electrochimica acta preparation of graphene/ $\text{Co}_3\text{O}_4$  Composites by hydrothermal method and their electrochemical properties. *Electrochimica Acta* 95: 139-145.
- Jin, A., Jia, Y., Chen, C., Liu, X., Jiang, J., Chen, X. & Zhang, Z. 2017. Efficient photocatalytic hydrogen evolution on band structure tuned polytriazine/heptazine based carbon nitride heterojunctions with ordered needle-like morphology achieved by an *in situ* molten salt method. *Journal of Physical Chemistry C* 121(39): 21497-21509.
- Li, Q., He, Y. & Peng, R. 2013. Graphitic carbon nitride ( $\text{G-C}_3\text{N}_4$ ) as a metal-free catalyst for thermal decomposition of ammonium perchlorate. *RSC Adv.* 5(31): 24507-24512.
- Liu, J., Zhang, T., Wang, Z., Dawson, G. & Chen, W. 2011. Simple pyrolysis of urea into graphitic carbon nitride with recyclable adsorption and photocatalytic activity. *Journal of Materials Chemistry* 21(38): 14398-14401.
- Mohd-Nasir, S.N.F., Ebadi, M., Sagu, J.S., Sulaiman, M.Y., Ludin, N.A., Ibrahim, M.A. & Teridi, M.A.M. 2015. Influence of ethylene glycol on efficient photoelectrochemical activity of  $\text{BiVO}_4$  photoanode via AACVD. *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science* 212(12): 2910-2914.
- Mohamed, N.A., Safaei, J., Aznan, F.I., Mohamad Noh, M.F., Soh, M.F., Ibrahim, M.A., Ahmad Ludin, N. & Mat Teridi, M.A. 2018. Efficient photoelectrochemical performance of gamma irradiated  $\text{g-C}_3\text{N}_4$  and its  $\text{g-C}_3\text{N}_4 @ \text{BiVO}_4$  heterojunction for solar water splitting. *J. Phys. Chem. C.* 123(14): 9013-9026.

- Mohil, M. & Kumar, G.A. 2013. Gamma radiation induced effects in TeO<sub>2</sub> thin films. *Journal of Nano and Electronic Physics* 5(2): 5-7.
- Peng, D., Wang, H., Yu, K., Chang, Y., Ma, X. & Dong, S. 2016. Photochemical preparation of the ternary composite CdS/Au/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> with enhanced visible light photocatalytic performance and its microstructure. *RSC Advances* 6(81): 77760-77767.
- Riyadh, C.H.A., Hussein, H.F. & Al-Fregi, A.A. 2012. The effects of gamma irradiation on the absorption spectra and optical energy gap of selenium dioxide thin films. *Science Journal of Physics* 2012(2): 1-4.
- Safaei, J., Ullah, H., Mohamed, N.A., Noh, M.F.M., Soh, M.F., Tahir, A.A., Ludin, N.A., Ibrahim, M.A., Wan Isahak, W.N.R. & Mat Teridi, M.A. 2018. Enhanced photoelectrochemical performance of Z-scheme g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BiVO<sub>4</sub> photocatalyst. *Applied Catalysis B: Environmental* 234: 296-310.
- Wang, X., Blechert, S. & Antonietti, M. 2012. Polymeric graphitic carbon nitride for heterogeneous photocatalysis. *ACS Catalysis* 2: 1596-1606.
- Yang, P., Zhao, J., Qiao, W., Li, L. & Zhu, Z. 2015. Ammonia-induced robust photocatalytic hydrogen evolution of graphitic carbon nitride. *Nanoscale* 7(45): 18887-18890.
- Yu, J., Wang, S., Cheng, B., Lin, Z. & Huang, F. 2013. Noble metal-free Ni(OH)<sub>2</sub>-g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> composite photocatalyst with enhanced visible-light photocatalytic H<sub>2</sub> production activity. *Catalysis Science & Technology* 3(7): 1782-1789.
- Zhang, G., Zhang, J., Zhang, M. & Wang, X. 2012. Polycondensation of thiourea into carbon nitride semiconductors as visible light photocatalysts. *Journal of Materials Chemistry* 22(16): 8083-8091.
- Zhang, J., Chen, X., Takanahe, K., Maeda, K., Domen, K., Epping, J.D., Fu, X., Antonietti, M. & Wang, X. 2010. Synthesis of a carbon nitride structure for visible-light catalysis by copolymerization. *Angewandte Chemie-International Edition* 49(2): 441-444.
- Zhang, L., Jing, D., She, X., Liu, H., Yang, D., Lu, Y., Li, J., Zheng, Z. & Guo, L. 2014. Heterojunctions in G-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/TiO<sub>2</sub> (B) nanofibres with exposed (001) plane and enhanced visible-light photoactivity. *J. Mater. Chem. A* 2(7): 2071-2078.
- Zhong, D.K.N. 2012. Solar water oxidation by composite cobalt-based catalyst/oxide semiconductor photoanode. Thesis Dr. Fal. University Washington (tidak diterbitkan).
- Nurul Aida Mohamed\*, Javad Safaei, Mohamad Firdaus Mohamad Noh, Mohd Fairuz Soh, Mohd Adib Ibrahim, Norasikin Ahmad Ludin & Mohd Asri Mat Teridi\*  
Solar Energy Research Institute (SERI)  
Universiti Kebangsaan Malaysia  
43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
Malaysia
- Aznan Fazli Ismail\*  
Nuclear Science Program  
Faculty of Science and Technology  
Universiti Kebangsaan Malaysia  
43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
Malaysia
- Aznan Fazli Ismail\*  
Center for Frontier Science  
Faculty of Science and Technology  
Universiti Kebangsaan Malaysia  
43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
Malaysia

\*Pengarang untuk surat-menyurat; email: asri@ukm.edu.my

Diserahkan: 3 Julai 2018

Diterima: 13 Mac 2019