

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Kebutuhan energi pada masa mendatang dapat terpenuhi melalui aplikasi komersial skala besar dari konversi daya, serta perangkat penyimpanan energi yang ramah lingkungan dan murah sebagai pemanfaatan dunia. Sumber listrik paling tersedia dan bersih adalah sinar matahari (Hossain *et al.*, 2020). Energi matahari dapat mengatasi masalah kelemahan energi yang semakin parah dan kontradiksi antara energi dan lingkungan karena kebersihannya yang baik dan tidak pernah habis. Kemunculan sel surya telah mewujudkan perubahan dari energi matahari menjadi energi listrik, sehingga memungkinkan manusia untuk menggunakan energi matahari secara efektif (Huang *et al.*, 2020). Perovskit adalah bahan dengan struktur umum ABX_3 ditetapkan sebagai kisi tiga dimensi oktahedral yang terletak di sudut. Ditemukan bahwa dengan mengganti elemen yang berbeda pada bagian A, B dan X, material baru akan muncul dengan sifat unik. Perovskit halida hibrida organik-anorganik memiliki beberapa keunggulan dalam penyerapan sel surya, diantaranya perovskit organik memiliki aplikasi secara sederhana dan kelemahannya terdapat pada masalah kestabilannya dalam menanggapi cahaya, panas, kelembaban dan oksigen, sedangkan pada perovskit anorganik lebih stabil, lebih rumit dan kestabilannya lebih tinggi. Perovskit halida hibrida organik-anorganik mengandung metil-amonium ($CH_3NH_3^+$) sebagai kation organik; Pb dan Sn sebagai kation anorganik; Cl, I dan Br sebagai halogen. Dalam hal ini, perovskit halida hibrida dengan $A = CH_3NH_3$; $B = Pb$ dan Sn ; $X = Cl, I$ dan Br dikenal sebagai celah pita yang dapat diterima untuk diterapkan pada perangkat optoelektronik, terutama sebagai foto bahan penyerap di sel surya (Afsari *et al.*, 2019). Bahan perovskit hibrida

organik-anorganik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br) menunjukkan sifat optik dan listrik yang sangat baik dalam aplikasi fotovoltaik seperti sel surya, dioda pemancar cahaya dan fotodetektor. Bahan $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ memiliki keunggulan biaya rendah, proses solusi sederhana, suhu preparasi rendah. Dalam sepuluh tahun terakhir, *Photoelectric Conversion Efficiency* (PCE) sel surya perovskit berbasis $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ telah meningkat dari 3.8% menjadi 23.7%, menunjukkan prospek aplikasi yang baik di bidang fotovoltaik dan kemungkinan akan menjadi bahan generasi baru untuk sel surya (Roknuzzaman *et al.*, 2018). Saat ini, banyak penelitian telah dilakukan pada film tipis $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br) dan kristal tunggal. Namun, bahan perovskit $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ tidak stabil di udara dan elemen timbal yang terurai akan berpotensi menimbulkan polusi terhadap lingkungan, yang membatasi aplikasinya dalam perangkat optoelektronik. Oleh karena itu, diperlukan persiapan kristal perovskit yang bebas timbal atau lebih sedikit timbal. Timah dan timbal termasuk dalam kelompok unsur yang sama dan memiliki sifat kimia yang serupa, sedangkan Sn memiliki toksisitas rendah dan oksidanya memiliki sedikit pencemaran lingkungan. Oleh karena itu, penelitian tentang $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ juga menjadi sorotan di bidang material optoelektronik (Huang *et al.*, 2019).

Beberapa penelitian perhitungan teoritis diperlukan untuk meningkatkan stabilitas dan efisiensi sel surya perovskit halida hibrida organik-anorganik. Banyak studi penelitian telah dilakukan di bidang perovskit $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ dengan memanfaatkan perhitungan serta analisis teoritis untuk memahami sifat material elektronik. Suhaili, dkk (2017) menyatakan struktur pita yang dihitung dari kristal ortorombik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ dan $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ dapat dilihat bahwa kedua senyawa menunjukkan celah pita langsung di titik G simetri dengan celah pita elektronik terhitung masing-masing 1.721 eV dan 0.935 eV. Organik $[\text{CH}_3\text{NH}_3^+]$ kation hanya membuat kontribusi kecil untuk pembentukan VBM dan CBM di sekitar tingkat energi Fermi (Suhaili *et al.*, 2017). Ali, dkk (2018) menyatakan bahwa struktur pita *Kohn-Sham* dari materi $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ yang dihitung menggunakan PBE dan PBEsol, keduanya *Valence Band Maximum* (VBM) dan *Conduction Band Minimum* (CBM) ditemukan terletak di gamma Γ titik *Brillouin Zone* (BZ). Hasilnya sesuai dengan penelitian sebelumnya menunjukkan bahwa fase ortorombik memiliki celah pita langsung pada titik gamma (Ali *et al.*, 2018). Amnuyswat dan Thanomngam (2018) mengilustrasikan struktur pita elektronik di sepanjang titik simetri tinggi di *Brillouin Zone* (BZ) dari tetragonal $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ dengan dan tanpa efek SOC. Hasil perhitungan menunjukkan bahwa kombinasi antara GW dan SOC (GW + SOC) adalah pende-

katan komputasi yang sesuai untuk memperoleh sifat elektronik secara akurat untuk senyawa perovskit hibrida (Amnuyswat & Thanomngam, 2018). Afsari, dkk (2019) menyatakan sifat elektronik senyawa perovskit CsPbI_3 dan $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ fase kubik termasuk struktur pita, kepadatan keadaan, celah pita dan massa efektif dihitung berdasarkan konstanta kisi dari struktur. Menurut perhitungan GGA-PBE, perovskit hibrida MAPbI_3 memiliki celah pita langsung secara teoritis 1.4 eV di titik R dengan pita konduksi mengandung tingkat degenerasi dua kali lipat di tepinya dan tingkat degenerasi empat kali lipat terletak di atas. Besarnya estimasi band gap dengan pendekatan GGA-PBE mendekati nilai eksperimental dan nilai teoritis lainnya (Afsari *et al.*, 2019). Faghihnasiri, dkk (2020) menyatakan bahwa tren variasi celah pita struktur MAPbX_3 ($X = \text{Cl}, \text{Br}$ dan I) di bawah regangan dengan ketiga pendekatan PBEsol, SOC dan HSE06 adalah sama. Karena pendekatan PBEsol paling cocok dengan hasil eksperimental, investigasi yang lebih akurat pada pergeseran pita konduksi dan valensi telah dilakukan dengan pendekatan ini agar menjadi lebih baik tentang bagaimana celah pita bervariasi di bawah tekan dan tarik strain. Tren ini memiliki kesepakatan dengan hasil teoritis dan eksperimental (Faghihnasiri *et al.*, 2020). Sharma, dkk (2020) $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnX}_3$ ($X = \text{Br}$ dan I) ada dalam fase yang berbeda sebagai fungsi dari suhu mirip dengan $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ dan mengalami transisi struktural dari fase kubik, tetragonal, ortorombik dan monoklinik hingga triklinik fase menurunkan suhu. Ketidakteraturan (CH_3NH_3^+) dan distorsi (SnX_3^-) oktahedral pada suhu yang terbatas adalah penyebab fase transisi yang rumit di $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnX}_3$. Senyawa ini memiliki sifat semikonduktor (Sharma *et al.*, 2020). Shukla, dkk (2020) telah menemukan celah pita yang lebih tepat dan akurat, yaitu 1.172 eV untuk $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ dan 1.902 eV untuk $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnBr}_3$ dengan menggunakan *modified Tran and Blaha* (mBJ) yang dimodifikasi dan sangat sesuai dengan studi eksperimental. Total DOS dan proyeksi DOS untuk perovskit kubik MASnI_3 dan MASnBr_3 menyatakan bahwa kenaikan konstanta kisi diamati saat beralih dari Sn ke Pb, demikian pula celah pita senyawa berbasis timbal lebih besar dari pada senyawa berbasis timah (Shukla *et al.*, 2020). Karena kebanyakan penelitian ini dilakukan pada fase ortorombik, maka penelitian terbarunya dilakukan pada fase kubik.

Quantum Espresso (QE) adalah alat hitung struktur elektronik suatu sistem atau model material. Kelebihan yang dimiliki QE adalah basis DFT yang tidak secara langsung memecahkan mekanika kuantum sehingga kalkulasi akan lebih efisien, basis PW yang memungkinkan sebuah sistem besar diwakilkan pada sebuah sis-

tem kecil (memanfaatkan sistem periodik gelombang bidang) sehingga kalkulasi akan semakin cepat dan basis pseudopotensial yang tidak menyertakan perhitungan energi potensial inti atom tapi kulit atomnya saja sehingga memungkinkan kalkulasi yang semakin cepat (Barnes *et al.*, 2017). *Density Functional Theory* (DFT) merupakan salah satu metode paling umum untuk mempelajari sifat material dalam ilmu *solid state*. DFT salah satunya digunakan untuk menganalisis sifat struktural, elektronik dan optik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br). Rotasi ion organik CH_3NH_3 yang cepat pada suhu tinggi menyebabkan tidak ada orientasi yang tepat pada fase kubik (Afsari *et al.*, 2019). Oleh karena itu, studi teoritis tentang sifat elektronik, struktur dan optik bahan perovskit sangat penting untuk mendapatkan wawasan tentang jenis bahan tersebut.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang di atas, maka permasalahan yang akan dibahas dalam penelitian ini adalah bagaimana sifat elektronik pada fase kubik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br) di VBM dan CBM, DOS (*Density Of States*) dan PDOS (*Projected Density Of States*)?

1.3 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan dari penelitian ini untuk mengetahui sifat elektronik dari senyawa $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br) pada fase kubik terhadap energi celah pita.

1.4 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan dapat dijadikan sebagai referensi atau acuan penelitian selanjutnya, baik yang berbasis komputasi maupun eksperimen.

1.5 Batasan Masalah

Penelitian ini memiliki batasan masalah, yaitu hanya dilakukan pada fase kubik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br).

1.6 Metode Pengumpulan Data

Dalam penelitian ini menggunakan dua metode pengumpulan data, yaitu :

1. Studi Literatur

Studi literatur dilakukan sebagai referensi atau tinjauan pustaka untuk mengumpulkan beberapa informasi yang berkaitan dengan penelitian. Referensi yang diambil dari berbagai sumber seperti jurnal dan buku-buku yang berkaitan dengan topik penelitian.

2. Komputasi

Simulasi dilakukan dengan menggambarkan struktur fase kubik $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{BX}_3$ (B = Pb dan Sn; X = Cl, I dan Br) pada *software Gaussview*. Selanjutnya, dilakukan *running file* input menggunakan *software Quantum Espresso* yang diakses melalui *software Burai*.

1.7 Sistematika Penulisan

Adapun pembahasan secara kompleks pada penelitian ini diuraikan di dalam setiap bab.

1. BAB I

Pendahuluan, mendeskripsikan mengenai latar belakang dilakukannya penelitian ini, beserta rumusan masalah yang terkandung di dalam penelitian yang dilakukan, tujuan dilakukannya penelitian, batasan masalah yang ada di dalam penelitian dan rangkuman dari keseluruhan penelitian yang diuraikan di dalam sistematika penulisan.

2. BAB II

Dasar teori, berisi tentang tinjauan pustaka dan teori-teori yang menjadi acuan untuk proses pengambilan data, analisis data, serta pembahasannya.

3. BAB III

Metode Penelitian, berisi tempat dan waktu dilaksanakannya penelitian, alat yang digunakan, model molekul yang digambarkan, beberapa optimasi yang dilakukan, diagram alir serta serangkaian prosedur penelitian.

4. BAB IV

Pembahasan, berisi tentang data-data penelitian dan analisis mengenai hasil penelitian.

5. BAB V

Penutup, berisi mengenai kesimpulan penelitian dan saran.

