

## PENINGKATAN EMISI HIDROGEN MELALUI ATOM HELIUM METASTABIL DENGAN METODE LASER INDUCED PLASMA PADA SAMPEL ZIRCALOY

Maliki, K. Sofjan Firdausi, Wahyu Setia Budi

Jurusan Fisika, Fakultas MIPA UNDIP Tembalang, Semarang

**ABSTRACT**--Telah dilakukan analisis unsur hidrogen dari sampel *zircaloy* dan sampel batu hitam melalui pembangkitan plasma gelombang kejut menggunakan laser Nd YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan rendah dengan mengalirkan gas helium dan gas nitrogen sebagai gas penyangga di dalam ruang sampel. Penelitian dilakukan untuk menunjukkan pengaruh atom helium metastabil pada peningkatan emisi hidrogen. Pengaruh atom helium metastabil pada peningkatan emisi hidrogen ditunjukkan dengan membandingkan penggunaan gas nitrogen dan gas helium sebagai gas penyangga pada tekanan 2 torr dan 5 torr. Dari penelitian, intensitas emisi hidrogen menggunakan gas nitrogen pada tekanan 2 torr dan gas helium pada 5 torr untuk sampel *zircaloy* masing-masing diperoleh sebesar 317,0 cacah/detik dan 4370,0 cacah/detik, sedangkan pada sampel batu hitam masing-masing diperoleh sebesar 297,6 cacah/detik dan 694,0 cacah/detik. Hasil ini menunjukkan atom helium metastabil yang dihasilkan melalui helium sebagai gas penyangga berpengaruh terhadap peningkatan emisi hidrogen pada sampel *zircaloy* dan batu hitam.

**Kata kunci** : sampel *zircaloy*, sampel batu hitam, *laser induced plasma*, atom helium metastabil, emisi hidrogen dan emisi helium.

### PENDAHULUAN

*Zircaloy* adalah material yang digunakan sebagai kontainer uranium reaktor (bahan bakar reaktor nuklir menggunakan air ringan), material ini mempunyai peran yang sangat penting dari tabung bahan bakar material tersebut diantaranya sebagai penahan atau *cover* dari pellet dan sebagai barier untuk mencegah kebocoran radioaktif dari bahan bakar nuklir air pendingin. *Zircaloy* merupakan *alloy* yang logam utamanya adalah zirkonium dengan campuran logam-logam lain dalam jumlah kecil seperti Sn, besi (Fe), krom (Cr) dan nikel (Ni) yang ditambahkan untuk memperkuat daya tahan korosi dan kekuatan dari material<sup>1)</sup>.

Pada proses fisis yang terjadi, *hot water* akan bereaksi dengan tabung *zircaloy* membentuk zirkonium oksida dan gas hidrogen. pada proses tersebut, hidrogen akan terjebak (*trapped*) di tabung *zircaloy*. Sebagaimana telah diketahui jika hidrogen terlalu banyak terkandung dalam material, maka akan mengurangi tingkat kekuatan material tersebut, karena atom hidrogen merupakan indikator terbentuknya korosi pada selongsong reaktor. Sehingga analisis hidrogen secara kontinyu perlu dilakukan untuk mengetahui tingkat kekuatan tabung *zircaloy* sebagai kontainer atau selongsong reaktor. Selama ini, analisis dilakukan dengan

menggunakan *melting* proses dengan mencairkan sampel *zircaloy* melalui *carbon furnace*. Hal ini mempunyai kelemahan diantaranya adalah pertama memakan waktu yang cukup banyak karena memerlukan preparasi sampel sebelum analisis, kedua radioaktif yang sangat membahayakan bagi para pekerja dengan analisis *carbon furnace*, karena harus melakukan *melting* atau mencairkan sampel *zircaloy* dan ketiga membutuhkan biaya yang relatif mahal<sup>2)</sup>.

Oleh karena itu dengan kelemahan-kelemahan tersebut, perlu dikembangkan metode yang sederhana dan efisien untuk mendeteksi keberadaan atom hidrogen pada *zircaloy*. Salah satunya adalah digunakan metode *Laser Induced Shockwave Plasma Spectroscopy* (LISPS), sehingga dapat dilakukan analisis secara cepat, tidak memakan waktu yang relatif lama untuk melakukan pemeriksaan terhadap tabung *zircaloy* dan bisa dilakukan secara *insitu*, serta biaya yang lebih murah.

Batu hitam merupakan sampel yang mengandung hidrogen secara alami (bukan didoping seperti *zircaloy*) dengan konsentrasi hidrogen yang tinggi, kurang lebih 3 000 ppm. Batu hitam tergolong batuan dan juga distribusi hidrogennya merata pada sampel sehingga sangat cocok digunakan dalam penelitian ini, dengan alasan mengandung



hidrogen dalam konsentrasi tinggi dan distribusinya homogen, dipilih sampel batu hitam untuk karakterisasi.

Spektroskopi adalah penggunaan absorpsi, emisi, atau hamburan radiasi elektromagnetik pada atom atau molekul (atomik atau ionik) untuk mengkaji secara kualitatif atau kuantitatif atom atau molekul dalam bahan. Spektroskopi bisa digunakan untuk menentukan identitas dan struktur atom dan molekul dengan cara menganalisis radiasi yang diemisikan atau yang diserap oleh atom maupun molekul yang terkandung dalam bahan<sup>4)</sup>.

Metode spektroskopi telah banyak dikembangkan dalam tiga dekade terakhir ini. Salah satu aplikasi dari metode ini adalah untuk menentukan komposisi kuantitatif bahan dalam mendeteksi kandungan unsur-unsur yang ada di dalamnya. Dengan mendeteksi berbagai unsur yang terkandung dalam suatu bahan, metode ini bisa digunakan untuk proses kontrol dan penilaian kualitas suatu produk. Beberapa metode spektroskopi yang sangat populer antara lain metode *Laser Microprobe Analyzer (LMA)*, metode *Atomic Absorption Spectrometry (AAS)*, dan metode *Atomic Emission Spectrometry (AES)*<sup>5)</sup>.

Metode LMA dapat digunakan untuk menentukan konsentrasi berbagai jenis unsur kimia dengan menggunakan elektroda bantu. Akan tetapi, metode ini mempunyai kelemahan seperti timbulnya kontaminasi oleh bahan elektroda bantu pada spektrum emisi dan memiliki kekurangan dalam hal ketelitian dan sensitivitasnya<sup>6)</sup>.

Metode AAS merupakan metode analisis spektrokimia yang berkembang pesat saat ini. Metode ini telah digunakan secara luas untuk menentukan keberadaan unsur logam dan nonlogam dalam sampel. Penggunaan dari metode ini diantaranya untuk menentukan prosedur standar kualitas air dengan kandungan garam yang rendah. Selain itu, metode ini juga digunakan di bidang industri metalurgi dan pertambangan untuk analisis kandungan logam. Namun demikian, metode ini mempunyai kelemahan diantaranya masih memerlukan perlakuan awal pada sampel yaitu bahan yang akan dianalisis dilarutkan dengan memakai larutan asam yang dapat mencemari lingkungan<sup>7)</sup>.

Metode AES merupakan metode spektroskopi yang dapat digunakan untuk analisis kualitatif dan kuantitatif bahan.

Metode ini merupakan metode yang sangat tepat digunakan untuk analisis bahan karena setiap unsur yang terkandung dalam bahan mampu mengemisikan karakteristik spektrum khusus pada kondisi tertentu. Metode ini dapat digunakan untuk mendeteksi secara langsung kandungan unsur dalam suatu bahan. Namun demikian, metode ini mempunyai kelemahan yaitu diperlukan tegangan tinggi 10-50 kv<sup>7)</sup>.

Dengan ditemukannya laser daya tinggi dan kualitas berkasnya yang baik, proses penguapan dan eksitasi atom dari sampel tidak lagi memerlukan elektroda bantu sehingga tidak lagi terjadi kontaminasi dari elektroda bantu. Hal ini memungkinkan metode baru yang aplikasinya menjadi sangat menarik karena tidak diperlukan perlakuan khusus sebelum analisis. Metode baru yang dikembangkan adalah metode analisis bahan melalui analisis plasma, sehingga analisis bahan menjadi makin cepat dan praktis. Dengan sistem plasma yang dibangkitkan dengan penembakan laser, sampel dapat dianalisis kandungan unsurnya dengan cepat<sup>8)</sup>.

Apabila sampel ditembak dengan laser daya tinggi maka akan terbentuk plasma. Penelitian yang dilakukan oleh Brech (1961) menyimpulkan bahwa sampel mampu mengemisikan berbagai unsur dan molekul baik atomik maupun ionik. Teknik tersebut kemudian disebut dengan *Laser Atomic Emission Spectrochemical Analysis (LAESA)*<sup>9)</sup>.

Teknik LAESA dikelompokkan menjadi dua bagian yaitu teknik *Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS)* dan teknik *Laser Induced Shockwave Plasma Spectroscopy (LISPS)*. LIBS merupakan metode spektroskopi yang dilakukan pada kondisi tekanan atmosfer. Teknik ini didasarkan pada analisis garis emisi plasma yang dihasilkan dengan cara memfokuskan laser pulsa berdaya tinggi pada sampel pada kondisi tekanan atmosfer<sup>10)</sup>. Sedangkan LISPS merupakan metode spektroskopi yang dilakukan pada kondisi tekanan rendah<sup>11)</sup>.

Laser pulsa berdaya tinggi yang difokuskan pada permukaan sampel dengan kondisi tekanan rendah akan menghasilkan plasma di atas permukaan sampel. Plasma ini terdiri atas dua daerah yang nampak yaitu plasma primer dan plasma sekunder. Plasma tersebut akan memancarkan cahaya dari berbagai macam panjang gelombang



tergantung dari sampel yang akan diidentifikasi. Cahaya yang dipancarkan oleh plasma merupakan hasil eksitasi atom-atom dalam sampel yang diakibatkan oleh penembakan sampel dengan laser daya tinggi. Pembangkitan plasma melalui penembakan laser hanya terjadi pada daerah yang kecil (*insitu*) sehingga hanya mengeksitasi atom-atom dari sebagian kecil permukaan sampel. Emisi cahaya yang dihasilkan oleh plasma merupakan representasi dari kandungan sampel. Dengan menggunakan *Optical Multichannel Analyzer (OMA)* yang dilengkapi dengan serat optik dapat diidentifikasi kandungan unsur yang ada di dalam sampel<sup>9)</sup>.

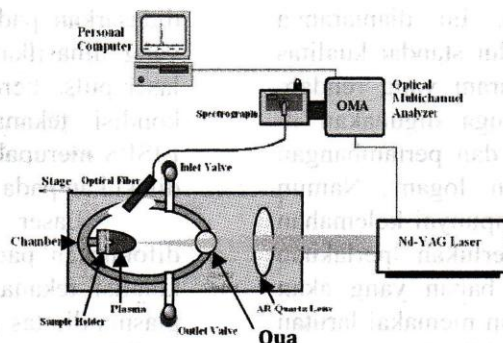
Penggunaan metode LISPS sangat baik untuk identifikasi unsur pada sampel organik. Beberapa kelebihan metode ini diantaranya tidak merusak sampel, dan mampu mengidentifikasi unsur, seperti unsur hidrogen dan unsur karbon, dengan baik<sup>12)</sup>. Beberapa penggunaan metode ini yang telah dilakukan diantaranya untuk analisis unsur pada air<sup>11)</sup> analisis unsur pada sampel kaca<sup>13)</sup> analisis spektrum pada sampel serbuk CuCl<sub>2</sub>, NaCl, dan ZnS<sup>14)</sup>, analisis intensitas garis emisi pada sampel logam<sup>15)</sup>, dan analisis emisi atom hidrogen pada sampel padat<sup>16)</sup>.

Pada penelitian ini dikaji tentang analisis peningkatan emisi hidrogen melalui atom helium metastabil dengan menggunakan metode *Laser Induced Plasma* pada sampel *zircaloy*. Sampel batu hitam digunakan untuk karakterisasi dengan alasan mengandung hidrogen dalam konsentrasi yang tinggi dan distribusinya homogen. Penelitian ini sangat penting karena *zircaloy* merupakan material yang sangat penting yang dipakai sebagai selongsong reaktor menggunakan air ringan.

## METODE PENELITIAN

Bahan yang digunakan dalam penelitian adalah sampel *zircaloy* sebagai target utama dan sampel batu hitam sebagai karakterisasi. Peralatan yang digunakan dalam penelitian adalah Laser Nd YAG (Quanta Ray, LAB SERIES, 8 ns, 1064 nm, 450 mJ) dioperasikan dengan Q-sw 10 Hz dengan energi *output* 68 mJ digunakan sebagai sumber energi *evaporasi* atom dan molekul pada sampel *zircaloy* dan batu hitam, *Chamber* silindris khusus telah dirancang untuk penelitian, dengan diameter dalam 115 mm dan tinggi 80 mm dilengkapi katup pipa pompa vakum digunakan sebagai tempat sampel dengan kondisi tekanan sekitar sampel yang dapat diubah-ubah, *Optical Multichannel Analyzer* resolusi tinggi (*OMA system, Andor I\*Star intensified CCD 1,024x256 pixels*) dan resolusi rendah (*OMA system, Princeton Instrument IRY-700*) dilengkapi dengan serat optik digunakan untuk mengetahui spektrum emisi plasma, pirani meter digital (DIAVAC, PT-1DA) digunakan untuk memonitor tekanan udara dalam *chamber* dan lensa *multicoating* dengan jarak fokus 250 mm digunakan untuk memfokuskan cahaya laser pada permukaan sampel *zircaloy* dan batu hitam.

Susunan peralatan yang digunakan untuk penelitian ditunjukkan pada gambar 1. Penelitian dilakukan dengan menggunakan laser Nd YAG 1064 nm dioperasikan *Q switched mode* dengan energi keluaran dari laser sebesar 68 mJ. Cahaya laser difokuskan ke permukaan sampel yang akan diidentifikasi kandungan unsur dengan menggunakan lensa *multicoating*.



Gambar 1. Susunan penelitian peningkatan emisi hidrogen melalui atom helium metastabil dengan metode *Laser Induced shockwave Plasma* pada sampel *zircaloy*.



Sampel di tempatkan pada *chamber* silindris, kondisi tekanan dalam *chamber* dapat diubah-ubah dengan menggunakan pompa vakum. Aliran gas pada ruang vakum (ruang sampel) diatur dengan memakai katup jarum yang menghubungkan pipa aliran gas dan katup jarum yang menghubungkan pipa pompa vakum. Tekanan dari *chamber* diukur dan dimonitor dengan menggunakan *digital pirani meter*, sampel bersama dengan keseluruhan ruang vakum dan lensa *multicoating* dapat digerakkan dua arah relatif terhadap arah radiasi laser dengan menggunakan step motor dan mikro meter pada arah tegak lurus radiasi laser. Di samping jendela *quartz*, ruang vakum juga dilengkapi dengan jendela kaca untuk pengamatan spektral dan pengamatan visual. Untuk memperoleh spektrum emisi plasma dengan lebih cepat dan menghasilkan emisi *background* yang rendah digunakan pengukuran spektrum emisi plasma dengan menggunakan OMA dan bantuan serat optik. OMA yang digunakan dalam penelitian disetting pada kondisi *gated delay* dan *gated width* masing-masing 2  $\mu$ s dan 50  $\mu$ s sehingga rasio signal *background* (S/B) menjadi lebih optimal.

Untuk menyelidiki distribusi intensitas emisi untuk ratio *background*, suatu teknik sederhana menggunakan celah dan fiber optik sebagai gantinya lensa yang disebut dengan teknik *imaging*. Lebar slit 2,5 mm dengan tinggi 15 mm diatur dipertengahan titik pusat plasma dan fiber yang mempunyai jarak 160 mm. Pada kondisi ini, lebar emisi daerah plasma 5 mm dapat dipilih. Secara serempak celah dan fiber bergerak, dapat dideteksi intensitas emisi pada jarak tertentu dari permukaan ke target. Untuk lebih sederhananya teknik ini disebut sebagai teknik plasma yang diiris.

Penentuan unsur hidrogen, helium, kalsium, dan zirkonium pada sampel *zircaloy* dan sampel batu hitam dilakukan dengan mengukur intensitas emisi plasma pada panjang gelombangnya. Selanjutnya dengan bantuan serat optik dikirim ke sistem OMA dan hasil pengamatan spektrum dicetak pada printer. Panjang gelombang emisi yang diperoleh dibandingkan dengan panjang

gelombang yang terdapat pada *Table Book Standard Reference Material* <sup>17)</sup>.

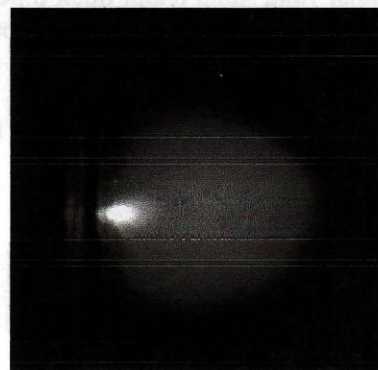
Parameter yang digunakan untuk membandingkannya adalah dengan menggunakan gas helium pada tekanan 2 torr dan gas nitrogen dengan tekanan 5 torr, karena adanya perbedaan densitas antara gas helium dan gas nitrogen maka tidak bisa membandingkan pada kondisi tekanan yang sama, menurut persamaan Sedov ukuran plasma tergantung pada densitas gas penyangga, bukan tergantung pada tekanan.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembangkitan plasma gelombang kejut untuk identifikasi unsur pada sampel *zircaloy* dan sampel batu hitam dilakukan untuk mengetahui pengaruh atom helium metastabil terhadap peningkatan emisi hidrogen. Dari eksperimen yang dilakukan dengan menembakkan laser pulsa daya tinggi Nd YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada sampel *zircaloy* dan sampel batu hitam dengan mengalirkan gas helium (He) dan gas nitrogen (N<sub>2</sub>) kedalam ruang sampel sebagai gas penyangga pada tekanan tertentu diperoleh emisi hidrogen, kalsium, zirkonium dan helium

### Plasma yang dihasilkan pada tekanan rendah dari sampel *zircaloy* dan batu hitam.

Plasma dari sampel *zircaloy* diperlihatkan pada gambar 2 berikut.

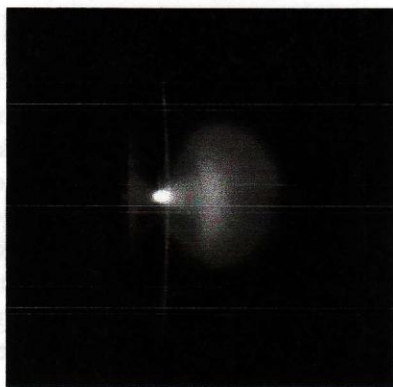


Gambar 2. Plasma dari sampel *zircaloy* yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 5 torr dengan gas helium.



Lapisan dengan warna berbeda bisa diamati dengan jelas pada foto plasma diatas. Kemungkinan ini ada kaitannya dengan fakta bahwa sampel *zircaloy* mempunyai banyak emisi garis yang berbeda dengan energi eksitasi yang berbeda pula. Menarik untuk dicatat bahwa kebanyakan lapisan luar berwarna *orange* yang berkaitan erat dengan emisi gas helium yang kuat pada helium He (I) 587.5 nm.

Plasma dari sampel batu hitam diperlihatkan gambar 3 berikut.



Gambar 3. Plasma dari sampel batu hitam yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 2 torr dengan gas nitrogen.

Ditunjukkan bahwa warna merah sebagian besar dihasilkan dari emisi atom nitrogen. Hal ini ditetapkan dengan mengubah gas nitrogen dengan gas helium pada kondisi yang sama tetapi tidak diperoleh warna merah, sehingga dapat disimpulkan bahwa warna merah timbul karena emisi atom nitrogen.

Plasma dari sampel batu hitam diperlihatkan gambar 4.



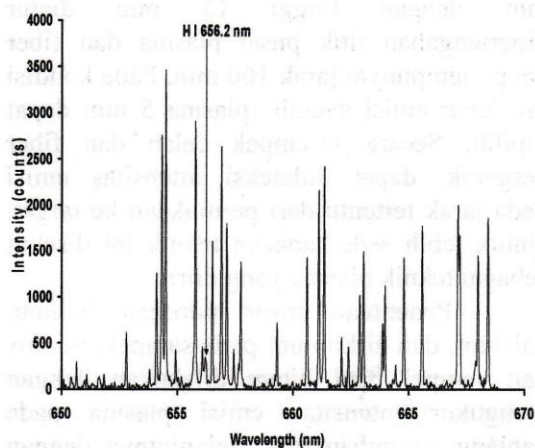
Gambar 4. Plasma dari sampel batu hitam yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 5 torr dengan gas helium.

Pada gambar 4, diperlihatkan warna merah keungu-unguan pada plasma sebagian besar timbul dari emisi atom kalsium. Perlu diperhatikan bahwa ukuran plasma dengan menggunakan gas helium sebagai gas penyangga diperoleh ukuran plasma yang lebih besar dibandingkan dengan ukuran plasma dengan gas nitrogen.

Warna plasma diperoleh dari eksitasi unsur yang terdapat di dalam sampel tersebut. Dari gambar di atas dapat dilihat perbedaan warna dari masing-masing plasma. Plasma yang dihasilkan terdiri dari atas dua daerah yang berbeda. Daerah yang pertama adalah daerah kecil dengan intensitas yang sangat tinggi ditunjukkan dengan warna putih dan disebut dengan plasma primer (*primary plasma*), yang menghasilkan intensitas, spektrum emisi kontinyu dalam jangka waktu yang singkat diatas permukaan target. Daerah yang kedua adalah daerah yang berada di sekitar plasma primer, sebagai hasil ekspansi plasma dari plasma primer, yang disebut dengan plasma sekunder (*secondary plasma*) dengan memancarkan spektrum atomik yang tajam dengan sinyal *background* rendah.

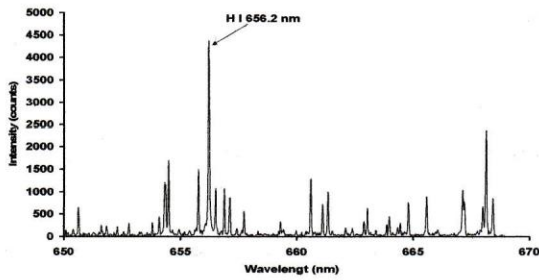
#### Spektrum emisi sampel *zircaloy*

Spektrum emisi dari sampel *zircaloy* pada tekanan 5 torr, diperlihatkan pada gambar 5



Gambar 5. Spektrum emisi dari sampel *zircaloy* yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 2 torr dengan gas nitrogen pada daerah panjang gelombang 650 nm-670 nm.

Spektrum emisi dari sampel *zircaloy* pada tekanan 2 torr, diperlihatkan gambar 6.

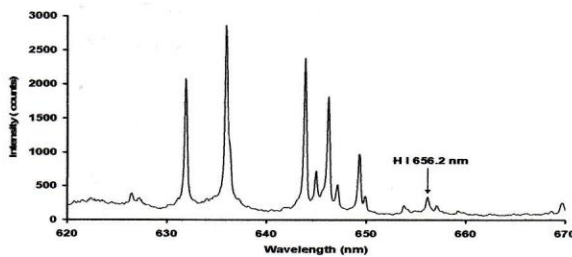


Gambar 6. Spektrum emisi dari sampel *zircaloy* yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns 68 mJ) pada tekanan 5 torr dengan gas helium pada daerah panjang gelombang 650 nm-670 nm.

Dari gambar tersebut dengan jelas diperlihatkan bahwa spektrum emisi H secara signifikan meningkat pada kondisi gas helium sebagai gas penyangga. Peningkatan spektrum emisi H disebabkan adanya peran dari atom helium metastabil.

**Spektrum emisi sampel batu hitam.**

Spektrum emisi dari sampel batu hitam pada tekanan 2 torr, diperlihatkan pada gambar 7.

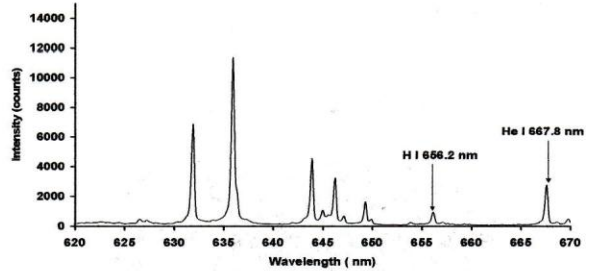


Gambar 7. Spektrum emisi dari sampel batu hitam yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 2 torr dengan gas nitrogen.

Karakteristik berbagai spektrum yang mempresentasikan kandungan unsur pada *zircaloy* menunjukkan intensitas yang berbeda-beda. Perbedaan intensitas spektrum dipengaruhi oleh faktor internal dan faktor eksternal. Beberapa faktor internal diantaranya tingkat energi elektronik dari atom, populasi atom pada setiap tingkat energi, dan probabilitas perpindahan atom ke tingkat energi yang lebih tinggi. Sedangkan faktor eksternal yang mempengaruhi

diantaranya energi dari laser yang digunakan untuk *evaporasi* atom, panjang gelombang sinar laser, dan efektifitas emisi<sup>18)</sup>.

Spektrum emisi dari sampel batu hitam pada tekanan 5 torr dengan gas helium diperlihatkan pada gambar 8.

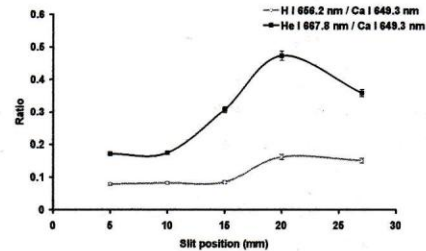


Gambar 8. Spektrum emisi dari sampel batu hitam yang ditembak menggunakan laser Nd-YAG (1064 nm, 8 ns, 68 mJ) pada tekanan 5 torr dengan gas helium.

Pada kondisi gas Helium diperlihatkan pada gambar 8, bahwa semua garis emisi mengalami peningkatan terutama garis emisi H. Selain itu, garis emisi He (I) 667,8 nm juga dihasilkan pada kondisi *helium surrounding gas*.

**Distribusi intensitas emisi hidrogen dengan gas helium.**

Distribusi intensitas emisi H dari sampel batu hitam diperlihatkan pada gambar 9.



Gambar 9. Distribusi intensitas emisi hidrogen dari sampel batu hitam pada tekanan 5 torr dengan gas helium

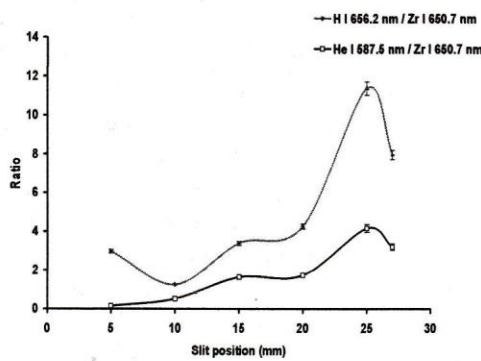
Pada gambar 9, secara jelas diamati bahwa pada kondisi tekanan 5 torr menggunakan gas helium sebagai gas penyangga, diperoleh intensitas emisi hidrogen dan He sebagian besar terletak pada sisi depan plasma dan keduanya mempunyai distribusi yang hampir sama. Namun demikian keduanya, hidrogen dan He, Sebagian besar tereksitasi pada daerah sisi



depan plasma yang mempunyai temperaturnya rendah. Hal ini menunjukkan bahwa emisi atom hidrogen dan He tereksitasi oleh atom helium metastabil yang dihasilkan dari helium sebagai *surrounding gas*. Perlu diperhatikan bahwa perbedaan energi eksitasi antara hidrogen (12 eV) dan metastabil atom helium (19,8 eV) sangat besar sehingga tidak mampu terjadi transfer energi secara langsung, oleh karena itu, diasumsikan bahwa eksitasi ini berlangsung melalui *penning effect*.

**Distribusi intensitas emisi hidrogen dengan gas helium.**

Distribusi intensitas emisi H dari sampel *zircaloy* diperlihatkan pada gambar 10.

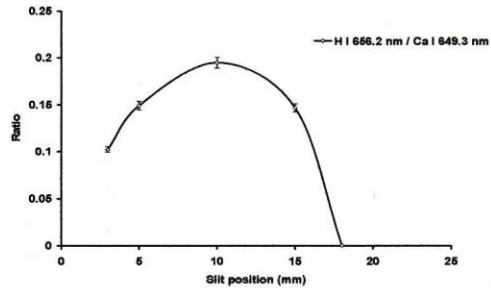


Gambar 10. Distribusi intensitas emisi H (I) 656,2 nm dari sampel *zircaloy* pada tekanan 5 torr dengan gas helium.

Pada gambar 10. secara jelas diamati bahwa emisi H dan He yang dinormalisir intensitasnya dengan intensitas emisi unsur *host element* dalam sampel yaitu zirkonium, cenderung mempunyai pola yang sama dan sebagian besar terdistribusi di plasma bagian depan. Oleh karena itu, pada *zircaloy*, metastabil atom helium juga berperan penting dalam eksitasi atom H karena atom helium metastabil mempunyai energi yang lebih besar dari pada energi eksitasi yang dimiliki oleh atom helium sehingga dengan energi yang tinggi ini atom helium dapat meningkatkan emisi dari atom helium.

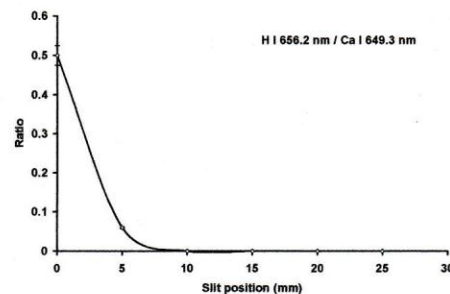
**Distribusi intensitas emisi hidrogen dengan gas nitrogen.**

Distribusi intensitas emisi H dari sampel batu hitam pada tekanan 2 torr, diperlihatkan pada gambar 11.



Gambar 11. Distribusi intensitas emisi H (I) 656,2 nm dari sampel batu hitam pada tekanan 2 torr dengan gas nitrogen.

Distribusi intensitas emisi H dari sampel batu hitam pada tekanan 20 torr, diperlihatkan pada gambar 12.



Gambar 12. Distribusi intensitas emisi H (I) 656,2 nm dari sampel batu hitam pada tekanan 20 torr.

Dari gambar tersebut dapat dijelaskan bahwa plasma yang dihasilkan pada kondisi gas  $N_2$  dengan tekanan 2 torr mengandung intensitas emisi hidrogen yang menyebar ke daerah yang lebih luas sebagaimana intensitas emisi Ca yang ada di sekitarnya. Sedangkan pada kondisi yang sama dengan tekanan 20 torr diperlihatkan pada gambar 12, intensitas emisi hidrogen hanya mengumpul pada permukaan dekat sampel saja. Dari hasil tersebut dapat disimpulkan bahwa atom hidrogen tidak dapat tereksitasi pada tekanan tinggi dikarenakan adanya *mismatch effect*, yaitu suatu efek yang dihasilkan karena atom ringan, seperti H, terablasi dari sampel dengan cepat melebihi kecepatan gelombang kejut yang dihasilkan akibat ledakan yang terjadi pada *primary plasma*. Sedangkan *front shock wave* sendiri mempunyai peranan yang



sangat penting di dalam proses eksitasi atom-atom yang terablasi dari sampel.

Emisi dari atom hidrogen sangat sulit untuk dideteksi pada tekanan 1 atm (760 torr). Dengan kata lain, sangat sulit membuat analisis H menggunakan teknik plasma laser spektroskopi pada tekanan tinggi. Hal ini disebabkan oleh beberapa hal. Salah satunya yang paling penting adalah efek ketidakserempakan. Maksudnya, sebagaimana yang diketahui bahwa, begitu suatu material diirradiasi dengan berkas laser yang terfokus, maka atom-atom terpenyal keluar (*gushing out*) kemudian menumbuk molekul-molekul gas sekitar sehingga terjadi kompresi yang sangat kuat dan muncullah emisi plasma. Apabila material itu homogen, maksudnya terdiri dari satu atom penyusun saja, misalnya, maka semua atom penyusun tersebut bergerak dengan kecepatan sama sehingga sama-sama melakukan kompresi, sama-sama tereksitasi, sehingga sama-sama memancarkan emisi ketika atom-atom tersebut kembali ke keadaan dasar. Bila material tersusun dari atom-atom yang berbeda, misalnya kalsium dan atom hidrogen, maka kecepatannya berbeda, dimana atom hidrogen karena massanya sangat kecil (H:1) akan bergerak meninggalkan target material dengan kecepatan yang lebih tinggi dari kecepatan atom kalsium, karena massa atom kalsium jauh lebih besar (Ca:40). Akibatnya, karena atom H telah bergerak lebih dahulu meninggalkan target, maka atom hidrogen tersebut tidak dapat mengalami eksitasi karena hanya atom kalsium, massanya lebih besar, yang sebenarnya secara dominan melakukan kompresi dan memunculkan *shockwave* sehingga atom kalsium tereksitasi sehingga terbentuk emisi kalsium. Jadi efek ketidakserempakan ini menjadi sangat dominan pada tekanan tinggi, karena pembangkitan *shockwave* agak sedikit terlambat pada tekanan tinggi. Jadi *mismatching effect* inilah yang menjelaskan mengapa atom H tidak dapat dideteksi pada teknik spektroskopi plasma laser tekanan tinggi.

Metastabil maksudnya adalah hampir stabil, yaitu atom setelah tereksitasi mengalami relaksasi kemudian kembali ke keadaan dasar dengan melepaskan emisi. Atom-atom yang berada dalam keadaan dasar berarti telah berada dalam keadaan stabil,

untuk kebanyakan atom maka setelah eksitasi atom langsung kembali ke keadaan dasar kembali. Namun ada sebagian atom yang memiliki keadaan-keadaan metastabil diantara keadaan eksitasi dan keadaan dasar, seperti atom He, Ar dan lain-lain. Sehingga dalam kasus ini, dari keadaan tereksitasi atom akan turun ke keadaan metastabil, nanti setelah sekian lama dan mengalami beberapa proses fisis lainnya dia dapat turun kembali ke keadaan dasar. Jadi waktu hidup (*life time*) atom dalam keadaan metastabil cukup lama.

Dari kedua penjelasan tersebut, akan dipelajari lebih dalam mengenai hubungan helium metastabil dengan eksitasi hidrogen. Dua hal yang perlu diingat, pertama bahwa massa atom He juga kecil (He: 4) dan yang kedua adalah waktu hidup atom helium yang berada dalam keadaan metastabil cukup lama. Maka apabila suatu bahan yang mengandung atom hidrogen diirradiasi dengan berkas laser yang terfokus, dimana material tersebut ditempatkan dalam lingkungan helium gas, maka atom hidrogen akan keluar dengan kecepatan tinggi dari material tersebut dan menyebar dalam lingkungan sekitar. Pada saat yang bersamaan atom helium dieksitasi melalui proses *multiphoton absorption* dari berkas laser tersebut. Atom He yang tereksitasi ini segera turun ke keadaan metastabil. Atom He yang berada dalam keadaan metastabil ini juga bergerak dari pusat plasma ke lingkungan sekitar. Karena massa hidrogen dan He tidak terlalu berbeda maka atom helium metastabil tersebut kemudian bertemu dengan atom hidrogen, sehingga terjadi interaksi misalnya tumbukan sehingga terjadi transfer energi. Energi atom helium metastabil sekitar 19,8 eV, sementara energi eksitasi atom hidrogen hanya 12 eV. Karena adanya transfer energi ini akhirnya dihasilkan eksitasi atom. Jadi bukan eksitasi langsung karena irradiasi laser seperti atom helium tadi, melainkan melalui eksitasi tak langsung yakni, melalui helium metastabil. Ini terbukti dengan baik dari hasil-hasil percobaan, yakni waktu hidup emisi hidrogen menjadi panjang, selama adanya helium metastabil yang memiliki waktu hidup yang cukup panjang, karena emisi hidrogen muncul melalui helium metastabil. Selain itu, lebar spektral emisi hidrogen sangat sempit, yang menandakan bahwa eksitasi hidrogen terjadi pada waktu yang kemudian dari inisiasi plasma dimana jumlah ion dan



elektron telah berkurang dengan sangat signifikan. Jadi yang mungkin untuk mengeksitasi hidrogen pada waktu kemudian tersebut adalah atom helium dalam keadaan metastabil, karena atom helium memiliki waktu hidup yang cukup lama dan juga energi potensial yang cukup besar (19,8 eV).

### SIMPULAN

Dari hasil penelitian analisis pengaruh atom helium metastabil terhadap peningkatan emisi hidrogen H (I) 656,2 nm diperoleh bahwa pada sampel *zircaloy* pada tekanan 5 torr dengan gas helium didapatkan spektrum emisi hidrogen yang lebih tinggi dengan intensitas 4370,0 cacah/detik sedangkan dengan kondisi tekanan 2 torr gas nitrogen diperoleh intensitas sebesar 317,0 cacah/detik.

Pada sampel batu hitam pada tekanan 5 torr dengan gas helium didapatkan spektrum emisi atom hidrogen yang lebih tinggi dengan intensitas 694,0 cacah/detik sedangkan dengan kondisi tekanan 2 torr gas nitrogen diperoleh intensitas sebesar 297,6 cacah/detik. Dari hasil analisis diperoleh peningkatan emisi hidrogen melalui atom helium metastabil dengan menggunakan helium sebagai gas penyangga pada sampel *zircaloy* dan sampel batu hitam.

Penulis mengucapkan banyak terima kasih kepada Bapak Dr Hendrik Kurniawan yang telah memberikan bantuan dalam penggunaan laboratorium di *Maju Makmur Mandiri Research Centre*, dan juga terima kasih atas dorongan dan motivasinya sehingga terselesaikannya paper ini.

### DAFTAR PUSTAKA

1. Lestiani, D.D., 2003. *Zircaloy pada tabung bahan bakar nuklir*. Dimensi Vol.5 No.1 : Batan.
2. Kurniawan, K.H., T.J. Lie, N. Idris, T. Kobayashi, T. Maruyama. K. Kagawa. M.O. Tjia. A.N. Chumakov. 2004. *Hydrogen Analysis of Zircaloy Tube Used in Nuclear Power Station Using Laser Plasma Technique*. American Institute of Physics. Vol 96. No. 11. Hal 6859-6862.
3. Kurniawan, K. H., M. Pardede, R. Hedwig, Z. S. Lie, T. J. Lie, D. P. Kurniawan, M. Ramlie, K. Fukumoto, H. Niki, S. N. Abdulmadjid, N. Idris, T. Maruyama, K. Kagawa, M. O. Tjia. 2007. *Quantitative Hydrogen Analysis Of Zircaloy-4 Using*

- Low-Pressure Laser Plasma Technique*. American Chemical Society. Vol 79. 7. Hal 2703-2707.
4. Lie, T.J., Kurniawan, K.H., Davy P.K., M. Pardede, M.M. Suliyanti, A. Khumaeni, S.A. Natiq, S.N. Abdulmajid, Y.I. Lee, K.Kagawa, N. Idris, M.O.Tjia. 2005. *Elemental Analysis of Bead Samples Using A Laser Induced Plasma at Low Pressure*. Spectrochemical Acta
5. Suliyanti, M.M., S. Sardy, A. Kusworo, R. Hedwig, S.N. Abdulmadjid, K.H. Kurniawan, T.J. Lie, M. Pardede, K. Kagawa, M.O. Tjia. 2005. *Plasma Emission Induced by an Nd-YAG Laser at Low Pressure on Solid Organic Sample, its Mechanism, and Analytical Application*. American Institute of Physics. Vol 97. No 5. Hal 053305 1-9
6. Setiabudi, W. 1999. *Confined Plasma Induced by Nd-YAG Laser at Low Pressure* (Dissertasi). Jakarta: Program Studi Optoelektronika. Universitas Indonesia
7. Kurniawan, K.H. 1992. *The Generation of Shock Wave Plasma Induced by TEA CO<sub>2</sub> Laser and its Application for Spectrochemical Analysis*. (Dissertasi). Jakarta : Program Studi Optoelektronika. Universitas Indonesia
8. Kurniawan, K.H., T.J. Lie, N. Idris, M.O.Tjia. dan K. Kagawa. 2001. *Detection of the Density Jump in the Laser-Induced Shock Wave Plasma Using Low Energy Nd-YAG Laser at Low Pressure of Air*. Japan Spectroscopy. Vol 50. Hal 13-18
9. Pardede, M., K.H. Kurniawan, M.O. Tjia, K. Ikezawa, T. Maruyama, K. Kagawa. 2001. *Spectrochemical Analysis of Metal Elements Electrodeposited From Water Samples by Laser Induced Shockwave Plasma Spectroscopy*. American Institute of Physics. Vol 55. No 9. Hal 1229-1236.
10. Corsi, M., Cristoforetti, M. Hidalgo, D. Iriarte, S. Legnaioli, V. Palleschi, A. Salvetti, dan E. Tognoni. 2002. *Temporal and Spatial Evolution of a Laser Induced Plasma from a Steel Target*. Applied Spectroscopy. Vol 57. No. 6. Hal 715-721.
11. Oki, H., H. Suyanto, K.H. Kurniawan, T.J. Lie, Y.I. Lie, F. Sakan, N. Idris, K. Kagawa. 2004. *Water Analysis by Laser Induced Shock Wave Plasma Spectroscopy Using Re-crystallized KBr*



- Powder Confined in a Cylindrical Tube*. Japan Journal of Applied Physics. Vol 43. No. 3. Hal 1036-1037.
12. Kurniawan, 2004. *Hydrogen Emission by Nd-YAG Laser Induced Shock Wave Plasma and Its Application to the Quantitative Analysis of Zircalloy*. Applied Physics. Hal 1301-1309
  13. Hedwig, R., K.H. Kurniawan, K. Kagawa. 2001. *Confinement Effect of Primary Plasma on Glass Sample Induced by Irradiation of Nd YAG Laser at Low Pressure*. Japan Journal of Applied Physics. Vol 40. No. 10. hal 5938-5941.
  14. Suyanto, H. K.H. Kurniawan, T.J. Lie, M.O.Tjia, dan K. Kagawa.. 2002. *Application of Laser Plasma Confinement and Bending Effect for Direct Analysis of Powder Samples*. Spectrochimica Acta Part B. Vol 8. Hal 994-999
  15. Susilowati, E., T.J. Lie, K.H. Kurniawan. 2004. *Experimental Study on The Sensitive Emission Lines Intensities of Metal Sample Using Laser Ablation Technique and its Comparison to Arc Discharge Technique*. Proc. ITB Eng. Science. Vol 36 B. Hal 1-19
  16. Idris, N., K.H. Kurniawan, T.J. Lie, M. Pardede, H. Suyanto, R. Hedwig, T. Kobayashi, K. Kagawa, dan T. Maruyama. 2004. *Characteristic of Hydrogen Emission in Laser Plasma Induced by Focusing Fundamental Q-sw YAG Laser on Solid Samples*. Applied Physics. Vol 43. No. 7A. Hal 4221-4228.
  17. Phelps, 1991, F. M. *M.I.T. Wavelength Tables Volume 2, Wavelengths by Element III*. The Massachusetts Institute of Technology: USA.
  18. Khumaeni, A. 2006. *Analisis kandungan unsur pada sampel tasbih (Bead Samples) dengan metode pembangkit plasma gelombang kejut menggunakan laser Nd YAG 1064 nm* (Skripsi). Semarang : FMIPA Undip.