

## EFEK PENAMBAHAN CuI TERHADAP REGANGAN KISI DAN KONDUKTIVITAS BAHAN KONDUKTOR PADAT $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$ ( $x = 0,1$ HINGGA $0,4$ )

P. Purwanto, S. Purnama, E. Sukirman dan Alfian  
Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN  
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

### ABSTRAK

**EFEK PENAMBAHAN CuI TERHADAP REGANGAN KISI DAN KONDUKTIVITAS BAHAN KONDUKTOR PADAT  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  ( $x = 0,1 - 0,4$ ).** Bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  dibuat dengan cara mencampurkan serbuk CuI dan AgI dengan perbandingan fraksi berat. Pengukuran konduktivitas  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  dilakukan dengan alat *LCR-meter* pada frekuensi 0,1 Hz sampai 100 kHz. Regangan kisi konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  naik seiring dengan penambahan CuI. Konduktivitas konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  dengan fraksi berat  $x = 0,1$  hingga  $0,4$  menurun dengan naiknya fraksi berat CuI. Analisis struktur  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  menunjukkan puncak-puncak difraksi yang muncul adalah puncak-puncak CuI. Lama waktu *charge* dan *discharge* berbeda, namun tegangan masih relatif stabil.

**Kata kunci :** Bahan konduktor padat, Regangan kisi, Konduktivitas

### ABSTRACT

**THE EFFECT OF CuI ADDITION ON LATTICE STRAIN AND CONDUCTIVITY OF THE SOLID CONDUCTOR MATERIALS  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  ( $x = 0.1$  to  $0.4$ ).** The solid conductor  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  has been made by mixing CuI with AgI powders. The mixture was compacted and heated at the temperature of 300 °C for 3 hours. Conducting measurement has been done using LCR meter at frequency region from 0.1 Hz to 100 kHz. The conductivity value of  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$ , with weight fraction ( $x$ ) = 0.1 to 0.4, decreased with increasing  $x$ . Analysis of crystal structure, using x-ray diffraction method, showed that the structure of  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  is similar to that of CuI. The lattice strain value tend to increase with increasing CuI while the crystallite size tend to decrease with increasing CuI. The time period of charge and discharge was different and the voltage is relatively stable.

**Key words :** Solid state electrolyte, Lattice strain, Conductivity

### PENDAHULUAN

Bahan CuI memiliki sistem kristal kubik berpusat muka (*FCC*) dan berfasa- $\gamma$  pada suhu ruang, pada suhu di atas 400 °C mempunyai fasa- $\alpha$ .

Pada suhu ruang AgI mempunyai dua fasa yaitu fasa- $\gamma$  berstruktur kubik dan fasa- $\beta$  berstruktur heksagonal. AgI mempunyai konduktivitas listrik sekitar  $10^{-7}$  S/cm. Di atas suhu transisi AgI mengalami transisi dari fasa- $\beta$  ke fasa- $\alpha$ . AgI fasa- $\alpha$  mempunyai sifat superionik dengan nilai konduktivitas sekitar  $10^{-4}$  S/cm [1,2]

Bahan konduktor padat seperti AgI, CuI dan  $\text{Ag}_2\text{S}$  dapat bersifat superionik pada suhu tinggi atau dengan kata lain mengalami perubahan sifat dari bukan superionik ke superionik [3,4].

Dengan penambahan CuI pada bahan AgI diharapkan terjadi regangan kisi pada kristal

$(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  dan cacat kristal yang akan meningkatkan konduktivitas bahan. Dengan terjadinya regangan dan cacat, ada dua kemungkinan yang terjadi yaitu konduktivitas menurun atau sebaliknya [1].

Dalam percobaan ini dilakukan variasi penambahan CuI untuk mendapatkan data pada konsentrasi bahan tersebut mengalami regangan kisi dan cacat kristal. Untuk mengetahui adanya regangan kisi, maka dilakukan pengujian dengan difraksi sinar-x. Untuk memprediksi adanya cacat kristal dilakukan pengukuran konduktivitas pada bahan tersebut.

Selanjutnya setelah diperoleh nilai regangan dan konduktivitas optimum, dilakukan pengujian *Charge discharge* untuk mengetahui kestabilan prototipe baterai dengan melihat pada potensial ( $v$ ), arus ( $i$ ) dan waktu pengisian atau pelepasan ( $t$ ).

Dengan percobaan ini diharapkan diperoleh bahan  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  sebagai bahan konduktor padat yang memiliki konduktivitas yang baik, waktu pengisian singkat dan waktu pelepasan lebih lama atau umur baterai lebih tahan lama.

## TEORI

Konduktivitas ionik sebagai fungsi suhu dapat didekati dengan model Arrhenius [1] yaitu :

$$\sigma = \sigma_0 \exp(-E_a/kT) \dots\dots\dots (1)$$

dimana :

- $\sigma_0$  = Konduktivitas tak bergantung frekuensi
- $k$  = Konstanta Boltzman
- $T$  = Suhu (Kelvin)
- $E_a$  = Energi aktivasi

Konduktivitas ionik suatu bahan ditentukan oleh struktur kristalnya. Bahan dengan konduktivitas tinggi mempunyai jenis struktur dengan tumpukan atom tidak padat, sehingga mempunyai jaringan untuk dilewati ion yang bergerak. Jumlah celah yang dapat ditempati oleh ion sama atau lebih besar dibandingkan dengan jumlah ion yang bergerak atau bilangan okupansi. Konduktivitas didapat dari persamaan :

$$J = \sigma \varepsilon \dots\dots\dots (2)$$

dimana :

- $J$  = Kerapatan arus
- $\varepsilon$  = Medan listrik
- $\sigma$  = Konduktivitas
- $\rho$  = Resistivitas

Untuk arus  $I$  pada sebuah sampel bahan ionik dengan luas penampang tetap  $A$  ( $\text{m}^2$ ) dan panjang  $L$  ( $\text{m}$ ) dengan diberi tegangan  $V$  pada bahan yang diukur, maka kerapatan arus  $J$  adalah  $I/A$  ( $\text{Ampere}/\text{m}^2$ ), dan medan listrik  $\varepsilon$  adalah  $V/L$  ( $\text{V}/\text{m}$ ) sehingga persamaan 3 direduksi menjadi :

$$R = V/I = \rho L/A (\Omega) \text{ atau}$$

$$\rho = RA/L (\Omega \text{m}) \dots\dots\dots (3)$$

Apabila konduktansi,  $G$  adalah  $1/R$ , dan resistivitas  $\rho$  adalah  $1/\sigma$ , maka persamaan 3, dapat ditulis :

$$\sigma = G(L/A) \dots\dots\dots (4)$$

satuannya adalah  $\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$  atau Siemen/m.

## METODE PERCOBAAN

Bahan yang digunakan adalah CuI dan AgI produksi PT Alfa Aesar dengan kemurnian masing-masing 99,9 % dan 99,99 %.

Peralatan yang digunakan terdiri dari: timbangan analitik, mortar, alat pres, furnace, X-ray

diffractometer (XRD) dan alat ukur konduktivitas (LCR-meter).

Penelitian dibagi dalam dua kegiatan sebagai berikut :

- (a). Pencampuran serbuk CuI dan AgI dengan perbandingan fraksi berat tertentu ditunjukkan pada Tabel 1. Kedua campuran digerus dengan mortar dan dibuat pelet dengan tekanan 3000 psi ( $\sim 206,84 \cdot 10^7 \text{ N}/\text{m}^2$ ) dan dilanjutkan dengan pemanasan pada suhu  $300^\circ\text{C}$  selama 3 jam.
- (b). Pada bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  yang sudah dibuat pelet, dilakukan pengukuran difraksi sinar-X untuk menentukan struktur kristal dan konduktivitas dengan LCR-meter.

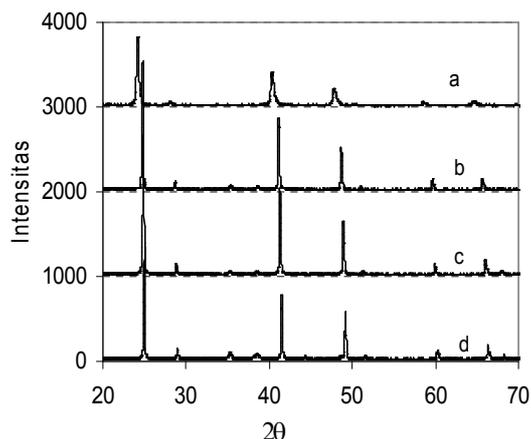
Tabel 1. Perbandingan fraksi berat serbuk CuI dan AgI

X	CuI (gr)	AgI (gr)
0,1	0,3307	3,6694
0,2	0,6744	3,3256
0,3	1,0319	2,9681
0,4	1,4040	2,5960

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Difraksi Sinar-X

Hasil pengukuran pola difraksi sinar-X bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  ditunjukkan pada Gambar 1. Puncak-puncak difraksi sinar-X untuk bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  relatif sama dengan puncak-puncak difraksi CuI. Hasil analisis menunjukkan bahwa bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  mempunyai struktur kristal yang sama dengan struktur CuI.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-X (a).  $(\text{CuI})_{0,4}(\text{AgI})_{0,6}$ , (b).  $(\text{CuI})_{0,3}(\text{AgI})_{0,7}$ , (c).  $(\text{CuI})_{0,2}(\text{AgI})_{0,8}$ , (d).  $(\text{CuI})_{0,1}(\text{AgI})_{0,9}$

Analisis puncak-puncak difraksi  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  ditunjukkan pada Tabel 2. Terlihat bahwa puncak-puncak mengalami pergeseran pada sudut  $2\theta$ . Penambahan fraksi berat CuI dengan  $x > 0,1$  pola difraksinya menunjukkan puncak CuI, sedangkan puncak AgI tidak nampak. Hal ini dikarenakan pada saat perlakuan panas

Tabel 2. Hasil perhitungan sudut  $2\theta$  dan  $\beta$

Bahan	$2\theta$ ( $^\circ$ )	$\beta$ (rad)
$(CuI)_{0,1}(AgI)_{0,9}$	24,970	0,0060
	41,495	0,0154
	49,151	0,0117
$(CuI)_{0,2}(AgI)_{0,8}$	24,862	0,0080
	41,316	0,0105
	48,920	0,0175
$(CuI)_{0,3}(AgI)_{0,7}$	24,780	0,0085
	41,136	0,0135
	48,682	0,0208
$(CuI)_{0,4}(AgI)_{0,6}$	24,170	0,0327
	40,350	0,0869
	47,833	0,0533

pada  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$ , bahan AgI lebih dulu mengalami transisi dari pada CuI, sehingga permukaan bagian luar pada bahan  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  yaitu CuI sedangkan bagian dalam AgI. Maka puncak yang nampak pada pola difraksi adalah puncak CuI.

Dari Gambar 2, dihitung regangan kisi konduktor padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  dengan mempergunakan persamaan pada acuan [5,6], yaitu:

$$\beta(\cos \theta/\lambda) = 0,9/D + 2 \eta(\sin \theta/\lambda) \dots\dots\dots (5)$$

dimana :

- $\beta$  = Lebar setengah puncak difraksi (FWHM)
- $\theta$  = Sudut Bragg
- $\lambda$  = Panjang gelombang sinar-X
- D = Ukuran kristal
- $\eta$  = Regangan.

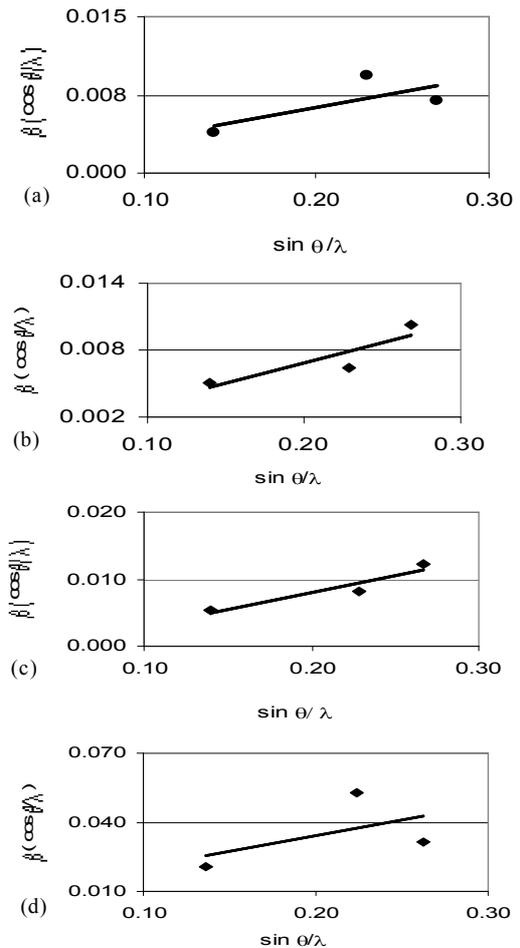
Sudut  $2\theta$  dan  $\beta$  diperoleh dari Gambar 1 dengan mempergunakan program 'Igor'. Hasil perhitungan ditunjukkan pada Tabel 2.

Dengan membuat kurva antara  $\beta \cos \theta/\lambda$  terhadap  $\sin \theta/\lambda$ , yang ditunjukkan pada Gambar 2 dapat ditentukan regangan kisi dari kemiringan garis hasil *fitting*. Dengan memakai data pada Tabel 2 dapat dihitung regangan  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$ , dengan variasi  $x = 0,1$  sampai  $0,4$  dengan mempergunakan persamaan (5), hasil perhitungan ditunjukkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil perhitungan regangan  $\eta$  untuk  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$

Bahan	$\eta$	D ( $^\circ$ A)
$(CuI)_{0,1}(AgI)_{0,9}$	$1,52 \times 10^{-2}$	4500
$(CuI)_{0,2}(AgI)_{0,8}$	$1,81 \times 10^{-2}$	1800
$(CuI)_{0,3}(AgI)_{0,7}$	$2,25 \times 10^{-2}$	450
$(CuI)_{0,4}(AgI)_{0,6}$	$6,60 \times 10^{-2}$	118

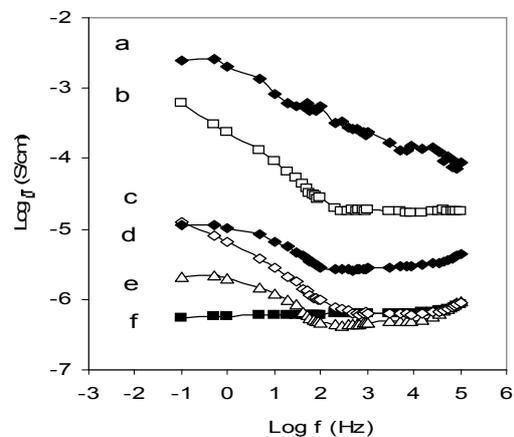
Hasil perhitungan regangan  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  berkisar  $1,52 \cdot 10^{-2}$  sampai  $6,60 \cdot 10^{-2}$ . Penambahan fraksi berat CuI dari  $x = 0,1$  sampai  $0,4$  menunjukkan nilai regangan naik teratur seiring dengan naiknya konsentrasi CuI. Begitu juga ukuran kristal menjadi kecil seiring dengan naiknya fraksi berat CuI.



Gambar 2. Kurva antara  $\beta \cos \theta/\lambda$  terhadap  $\sin \theta/\lambda$  (a).  $(CuI)_{0,1}(AgI)_{0,9}$ , (b).  $(CuI)_{0,2}(AgI)_{0,8}$ , (c).  $(CuI)_{0,3}(AgI)_{0,7}$ , (d).  $(CuI)_{0,4}(AgI)_{0,6}$

### Konduktivitas

Pengukuran konduktivitas bahan elektrolit padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  dilakukan menggunakan alat *LCR-meter* dengan frekuensi antara 0,01 Hz sampai dengan 100 kHz seperti ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Hasil pengukuran *LCR-meter* (a). CuI, (b).  $(CuI)_{0,4}(AgI)_{0,6}$ , (c).  $(CuI)_{0,3}(AgI)_{0,7}$ , (d).  $(CuI)_{0,2}(AgI)_{0,8}$ , (e).  $(CuI)_{0,1}(AgI)_{0,9}$  dan (f). AgI

Analisis konduktivitas elektrolit padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  dilakukan menggunakan model persamaan  $\sigma = \sigma_0 f^s$  yang telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya [7,8], yaitu :

$$\sigma = \sigma_0 f^s \dots\dots\dots (6)$$

Persamaan (6) diubah menjadi bentuk logaritma yaitu :

$$\log \sigma = \log \sigma_0 + s \log f \dots\dots\dots (7)$$

dimana :

- $\sigma$  = Konduktivitas,
- $\sigma_0$  = Konduktivitas yang tidak tergantung frekuensi
- $f$  = Frekuensi,
- $s$  = Faktor eksponen ( $0 < s < 1$ ).

Hasil perhitungan konduktivitas bahan elektrolit padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  yang merupakan fitting pada daerah frekuensi pertama antara 0,01 Hz hingga 100 Hz, dan daerah frekuensi kedua antara 200 Hz hingga 100 kHz ditunjukkan pada Tabel 4.

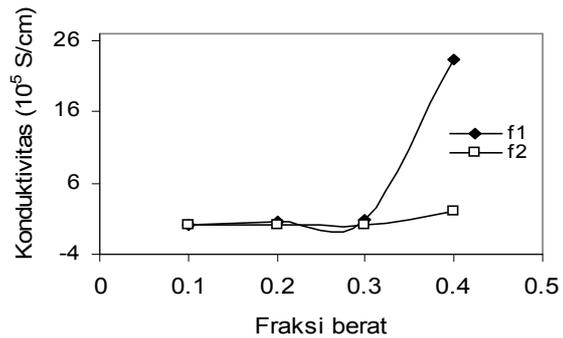
Tabel 4. Konduktivitas  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$

Sampel	$\sigma_{01}$ ( S/cm )	$\sigma_{02}$ ( S/cm )
CuI	$16,986 \times 10^{-4}$	$10,539 \times 10^{-4}$
$(CuI)_{0,4}(AgI)_{0,6}$	$23,447 \times 10^{-5}$	$1,988 \times 10^{-5}$
$(CuI)_{0,3}(AgI)_{0,7}$	$92,023 \times 10^{-7}$	$16,726 \times 10^{-7}$
$(CuI)_{0,2}(AgI)_{0,8}$	$61,136 \times 10^{-7}$	$5,532 \times 10^{-7}$
$(CuI)_{0,1}(AgI)_{0,9}$	$17,199 \times 10^{-7}$	$2,146 \times 10^{-7}$
AgI	$5,725 \times 10^{-7}$	$4,852 \times 10^{-7}$

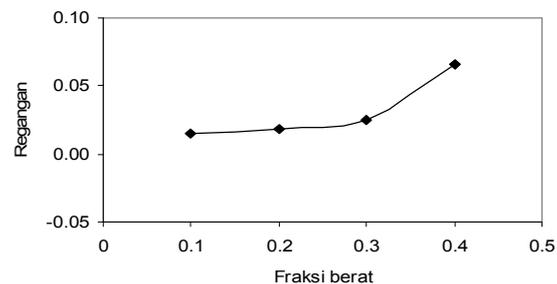
Faktor eksponen konduktor padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  mempunyai nilai berkisar -0,01 hingga +0,02 pada daerah frekuensi 0,01 Hz hingga 100 Hz, sedangkan pada daerah frekuensi 0,2 Hz hingga 100 kHz nilai faktor eksponen 0,20 hingga 0,45. Faktor eksponen (s) ini menunjukkan kemiringan kurva antara konduktivitas terhadap frekuensi. Kurva konduktivitas pada Gambar 3 terlihat datar dan linier pada daerah frekuensi pertama, hal ini menunjukkan suatu DC (Direct Current) konduktivitas yaitu konduktivitas konduktor padat tidak tergantung pada frekuensi, sedangkan pada kedua kurva konduktivitas tergantung frekuensi.

Nilai konduktivitas konduktor pada  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  untuk  $x = 0,1$  sampai dengan 0,4 berkisar  $2,146 \times 10^{-7}$  sampai  $23,447 \times 10^{-5}$  S/cm, sedangkan nilai konduktivitas CuI berkisar  $16,986 \times 10^{-4}$  S/cm dan AgI berkisar  $5,725 \times 10^{-7}$  S/cm. Bila dibandingkan dengan CuI, nilai konduktivitas campuran lebih kecil, tetapi nilai konduktivitas campuran  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  lebih besar dibandingkan konduktivitas AgI.

Hasil penelitian lain menunjukkan bahwa bahan superionik garam perak pada suhu ambient memiliki konduktivitas 0,08 S/cm [9]. Hubungan antara konduktivitas, regangan dan ukuran kristal terhadap fraksi berat CuI ditunjukkan pada Gambar 4a sampai dengan Gambar 4c.



Gambar 4a. Hubungan antara konduktivitas dengan fraksi berat pada daerah frekuensi  $f_1 = 0,1$  Hz-100 Hz dan daerah frekuensi  $f_2 = 200$  Hz-100 kHz



Gambar 4b. Hubungan antara regangan dengan fraksi berat

Dengan penambahan fraksi berat CuI, konduktivitas bahan konduktor padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$  naik, dimana CuI menghalangi gerakan ionik baik pada daerah frekuensi pertama 0,01 Hz sampai 100 Hz maupun daerah frekuensi kedua 200 Hz sampai 100 kHz.

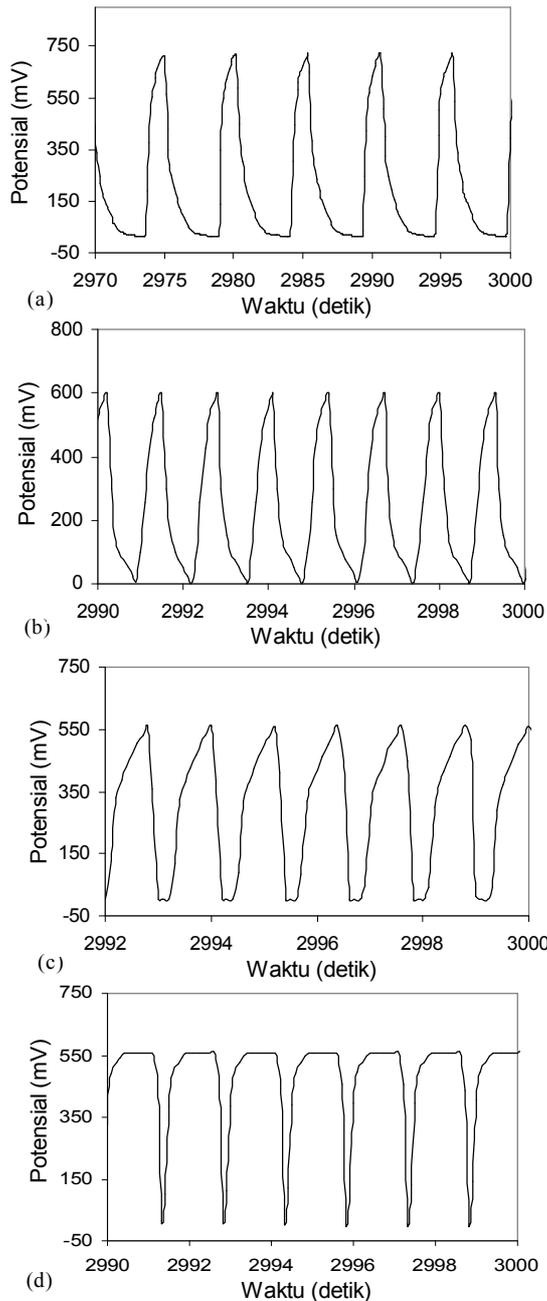
Pada Gambar 4b, terlihat bahwa regangan kristal naik seiring dengan naiknya fraksi berat CuI yang berarti adanya penyisipan atom.

### Charge Discharge

Dengan alat Charge Discharge dapat ditentukan lamanya suatu baterai diisi dan lamanya pelepasan atau lama waktu pemakaian, serta kestabilan potensial. Lamanya waktu pengisian dan pelepasan suatu baterai ditunjukkan pada Gambar 5.

Pada Gambar 5 diperlihatkan hasil Charge Discharge pada konduktor padat  $(CuI)_x(AgI)_{1-x}$ , untuk  $x$  dari 0,1 sampai 0,4 selama 3000 detik. Pengukuran diambil pada selang waktu antara 2800 detik sampai dengan 3000 detik. Dari Gambar 5, lamanya pengisian dan lamanya pemakaian berbeda, begitu juga tegangan yang diperoleh. Menurut [2], sebaiknya waktu isi baterai lebih singkat tetapi waktu pemakaian lebih lama.

Pada Tabel 4, terlihat bahwa waktu pengisian dan pemakaian ada yang lama dan ada yang singkat. Pengisian berhubungan dengan penggabungan kembali ion-ion yang telah terurai setelah pemakaian. Potensial yang diperoleh dalam kondisi stabil pada potensial antara 0,56 mV sampai 0,71 mV.



**Gambar 5.** Pengisian dan pelepasan konduktor padat  
(a).  $(\text{CuI})_{0,1}(\text{AgI})_{0,9}$ , (b).  $(\text{CuI})_{0,2}(\text{AgI})_{0,8}$ , (c).  $(\text{CuI})_{0,3}(\text{AgI})_{0,7}$ ,  
(d).  $(\text{CuI})_{0,4}(\text{AgI})_{0,6}$

**Tabel 3.** Waktu pengisian dan lama pemakaian baterai

Jenis konduktor	$t_{\text{isi}}$ (detik)	$t_{\text{pakai}}$ (detik)	V (volt)
$(\text{CuI})_{0,1}(\text{AgI})_{0,9}$	1,3	3,9	0,71
$(\text{CuI})_{0,2}(\text{AgI})_{0,8}$	0,8	0,6	0,60
$(\text{CuI})_{0,3}(\text{AgI})_{0,7}$	1	0,4	0,56
$(\text{CuI})_{0,4}(\text{AgI})_{0,6}$	0,8	0,7	0,56

Dari hasil Gambar 5c dan Gambar 5d, konduktor padat yang cukup baik yang mempunyai waktu pemakaian paling lama adalah konduktor padat  $(\text{CuI})_{0,1}(\text{AgI})_{0,9}$  dan  $(\text{CuI})_{0,2}(\text{AgI})_{0,8}$ .

## KESIMPULAN

Konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  telah dapat dibuat dengan pencampuran serbuk CuI dengan  $\beta\text{-AgI}$ . Pola difraksi sinar-X menunjukkan struktur kristalnya adalah struktur CuI. Dengan naiknya fraksi berat CuI, konduktivitas bahan konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  naik. Regangan kisi konduktor padat  $(\text{CuI})_x(\text{AgI})_{1-x}$  naik seiring dengan naiknya fraksi berat CuI. Dan ukuran kristal menjadi kecil seiring dengan naiknya fraksi berat CuI. Lamanya waktu pengisian dan pemakaian berbeda serta tegangannya yang dihasilkan stabil.

## DAFTAR ACUAN

- [1] S. CHANDRA and A. LASKAR, *Superionic Solid and Solid Electrolyte*, Academic Press, New York, (1990) 17-28
- [2] M.Z.A. MUNSHI, *Handbook of Solid State Batteries and Capacitor*, Word Scientific, Singapura, (1995) 111-129
- [3] D. LINDEN, *Handbook of Batteries*, McGraw-Hill, Singapura, **15** (1995) 1-27
- [4] E. KARTINI and M.F. COLLINS, *Physical B*, **213** (2000) 276-278
- [5] H.P. KLUG and L.E. ALEXANDER, *X-Ray Diffraction Procedures*, John Wiley & Son inc, London, **9** (1962) 642-652
- [6] S. PURNAMA dkk, *Prosiding Nasional Hamburan Neutron dan Sinar-X ke-5*, (2003) 121-126
- [7] A.K. JONSCHER, *Nature*, **261** (1977) 673-676
- [8] W.K. LEE, J.F. LIU and A.S. NOWICK, *Physc.Rev.Lett.*, **67** (1991) 1559-1561
- [9] M.F. COLLINS and E. KARTINI, *Solid State Ionic.*, **1** (2003) 157-174