

## ANALISIS STRUKTUR KOMPOSIT $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$ DENGAN METODE RIETVELD

Supandi Suminta dan Evvy Kartini

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN  
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

### ABSTRAK

**ANALISIS STRUKTUR KOMPOSIT  $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$  DENGAN METODE RIETVELD.** Analisis struktur kristal fasa  $\gamma$ -AgI bahan baru gelas komposit superionik  $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$ , pada  $x = 0,7$  dan  $x = 0,6$  telah dilakukan dengan metode *Rietveld*, Regangan mikro dan ukuran partikel diperoleh dari persamaan Hall's. Pengukuran struktur bahan komposit dilakukan menggunakan Difraktometer Sinar-X di Departemen Fisika Universitas Ibaraki, Japan. Profil pola difraksi Sinar-x bahan tersebut memperlihatkan beberapa puncak *Bragg* yang menunjukkan kesesuaian dengan kristalin fasa  $\gamma$ -AgI. Analisis struktur kristal dengan metode *Rietveld* fasa  $\gamma$ -AgI telah dilakukan. Hasil *refinement* masing-masing fasa menunjukkan bahwa struktur kristal presipitat tersebut teridentifikasi dari fasa  $\gamma$ -AgI, simetri grup ruang F-4 3 m No. 216, FCC dengan parameter kisi masing-masing adalah 6.506(1), 6.503(2) and 6.500(2) untuk  $x=1,0$  (AgI murni),  $x = 0,7$  dan  $0,6$ . Regangan mikro ( $\eta$ ) masing-masing adalah  $4,665 \times 10^{-3}$ ,  $6,95 \times 10^{-3}$ . dan  $7,45 \times 10^{-3}$ , serta ukuran patikel (D) masing-masing adalah 1075 Å, 493 Å dan 461 Å. Menurunnya harga D dan parameter kisi (a) serta naiknya harga  $\eta$  pada  $x = 0,7$  dan  $0,6$ , akan meningkatkan mobilitas ion yang diikuti dengan meningkat konduktivitas ioniknya. Disimpulkan bahwa proses solidifikasi AgI cair ke dalam matriks gelas  $\text{AgPO}_3$  menurunkan parameter kisi dan ukuran partikel yang mengakibatkan naiknya regangan mikro dan konduktivitas ionik.

**Kata kunci :** Regangan mikro, ukuran partikel, komposit, penghalusan dan analisis *rietveld*

### ABSTRACT

**STRUCTURE ANALYSIS OF COMPOSITE  $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$  BY RIETVELD METHOD.** Structure analysis of  $\gamma$ -AgI phase on composites  $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$  with  $x = 0.7$  and  $0.6$  have been carried out by Rietveld method. The micro strain and particle size are derived from Hall's equation. The measurement of the crystal structure has been carried out by using an X-ray Diffractometer at the Physics Department of Ibaraki University, Japan. The X-ray diffraction pattern shows some Bragg peaks that correspond to the crystalline  $\gamma$ -AgI. The crystal structure of pure AgI and the composite glass  $(\text{AgI})_x(\text{AgPO}_3)_{1-x}$  have been analysed by using Rietveld method. The refinement results show that  $\gamma$ -AgI phase has a symmetry space group F-4 3 m No. 216, FCC, with the lattice constant namely 6,506(1), 6,503(2) and 6,500(2) for  $x=1$  (pure AgI),  $x = 0.7$  and  $x=0.6$ , respectively. The micro strain ( $\eta$ ) of  $x = 1.0$ ,  $0.7$  and  $0.6$  are  $4.665 \times 10^{-3}$ ,  $6.95 \times 10^{-3}$  and  $7.45 \times 10^{-3}$  respectively, while the particle size (D) are 1075 Å, 493 Å and 461 Å respectively. The increase of micro strain ( $\eta$ ), and the decrease of particle size (D) and lattice constant (a) will increase the ionic mobility, thus increasing the ionic conductivity. It is concluded that solidification process on melt AgI into glass matrix  $\text{AgPO}_3$  not only decreases the lattice constant and the particle size, but it also increases the micro strain and the ionic conductivity.

**Key words :** Micro strain, particle size, composite, refinement, rietveld analysis

### PENDAHULUAN

Bahan konduktor superionik adalah padatan yang memiliki konduktivitas ionik sangat tinggi yaitu  $10^{-2}$  S/cm [1]. Kelemahan bahan tersebut adalah bersifat superionik pada suhu tinggi, contohnya AgI dan  $\text{Ag}_2\text{S}$ . Namun dengan penambahan substrat gelas akan diperoleh sistem konduktor superionik berbasis gelas dengan konduktivitas tinggi pada suhu ruang. Keunggulan konduktor berbasis gelas dibandingkan dengan padatan superionik lain terutama adalah konduktivitasnya yang tinggi sekitar  $10^{-2}$  S/cm pada

seluruh daerah suhu [2]. Oleh karena itu konduktor superionik berbasis gelas dapat diaplikasikan sebagai elektrolit padat di dalam perangkat elektrokimia [3] seperti baterai padat, sel bahan bakar, sensor kimia dan jendela cerdas [4]. Jika dibandingkan dengan padatan elektrolit berbasis keramik atau polikristal, konduktor superionik berbasis gelas memiliki beberapa keunggulan yaitu bersifat *inert* terhadap difusi *iodine* dan kelembaban, bersifat isotropik, tidak memiliki batas butir, mudah divariasikan untuk struktur tertentu dengan mengubah

komposisi kimianya dan mudah dibentuk dalam lapisan tipis serta konduktivitas listrik tinggi pada suhu ruang sekitar  $10^{-3}$  S/cm [5].

Gelas dari keluarga perak  $AgPO_3$  dan juga gelas dari keluarga alkali  $NaPO_3$  merupakan bahan yang tembus pandang (*transparent*) yang memiliki struktur acak (*amorf*). Meskipun demikian, gelas tersebut diyakini mempunyai struktur yang terdiri dari satuan tetrahedral  $PO_4$  yang membentuk jaringan acak dengan dua sudut berjembatan oksigen (*bridging oxygens* = BO) dan dua sudut tak berjembatan oksigen (*non bridging oxygen* = NBO). Hubungan silang (*cross linking*) rantai fosfat terjadi dengan ikatan ionik  $Ag^+/Na^+$  dan satu ikatan tunggal tak-berjembatan oksigen. Hal ini ditunjukkan dengan menggunakan teknik hamburan neutron, dimana pola hamburan berbentuk amorf, serta puncak-puncak amorf mengindikasikan pengaruh interaksi atom yang dominan [5].

Diantara bahan konduktor superionik gelas yang paling sering diteliti adalah keluarga perak-fosfat  $AgI-AgPO_3$  [6]. Berbagai penelitian telah dilakukan pada sistem tersebut, baik oleh peneliti di luar negeri maupun oleh kelompok superionik P3IB-BATAN [7]. Gelas  $AgPO_3$  pada dasarnya terdiri dari rantai fosfat  $PO_4$  berbentuk tetrahedral sebagaimana telah dijelaskan diatas dan memiliki konduktivitas listrik rendah yaitu sekitar  $10^{-7}$  S/cm pada suhu ruang, namun setelah ditambahkan  $AgI$  konduktivitasnya meningkat sampai pada  $10^{-2}$  S/cm, misalnya untuk gelas,  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ , dimana  $x = 0,55$  [8]. Pada salah satu model struktur gelas diterangkan bahwa pada sistem ini ion-ion  $Ag^+$  dan  $I^-$  menempati tetangga terdekat di dalam jaringan gelas tanpa mengubah struktur dari komponen pembentuk gelas, sebagaimana dikonfirmasi dengan hasil difraksi neutron dan simulasi RMC [5].

E. Kartini dan M.Collins [9] telah melakukan penelitian dengan meningkatkan prosentase garam *dopan*  $AgI$  pada gelas  $AgPO_3$  sehingga melebihi batas kelarutan (*solubility limit*), misalnya pada komposisi  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$ . Pola difraksi sinar-x menunjukkan bahwa sebagian bahan telah terkristalisasi, dimana kristal tersebut berasal dari presipitasi  $b$  dan  $\tilde{a}$  yang menyebar pada matriks gelas  $AgI-AgPO_3$  [9]. Tatsumisago, dkk [10] melakukan percobaan pada  $AgI$ ,  $Ag_2O$  dan  $B_2O_3$ . Hasil difraksi sinar-x menunjukkan presipitat berasal dari  $\gamma-AgI$ . Bahan baru tersebut yang merupakan campuran dari gelas dan kristal dinamakan gelas komposit superionik (*superionic composite glass*) [9]. Konduktivitas gelas komposit ini sangat tinggi yaitu sekitar  $10^{-2}$  S/cm sampai dengan  $10^{-1}$  S/cm pada suhu ruang. Pada saat pemanasan akan terjadi penurunan konduktivitas yang disebabkan oleh kristalisasi dari matriks gelas, sedangkan pada saat pendinginan konduktivitas akan turun karena adanya transformasi fasa dari  $\alpha-AgI$  ke  $\beta-AgI$  pada komposit gelas tersebut.

Pada  $x = 0,0$ ,  $0,6$  dan  $0,7$  antara  $2\theta = 15,00^\circ$  sampai dengan  $2\theta = 50,00^\circ$ , menunjukkan bahwa pada

$x = 0,0$  terlihat hanya daerah puncak lebar seperti bukit dan kuat, menandakan bahwa bahan tersebut didominasi oleh gelas dan bersifat *amorf*. Sedangkan pada  $x = 0,7$  dan  $0,6$  (suhu ruang) struktur yang terjadi merupakan campuran antara presipitat kristalin fasa  $\gamma-AgI$  dan gelas yang didominasi oleh kristalin [11].

Pada umumnya semakin tinggi nilai  $x$  semakin tinggi dan kuat puncak-puncaknya yang menempati pada daerah lebar. Pada  $x = 0,6$  dan  $x = 0,7$  puncak lebar semakin tidak terlihat karena ditempati oleh puncak-puncak tinggi dan kuat, menandakan bahwa bahan tersebut adalah bukan seluruhnya gelas tetapi sudah terjadi presipitasi dari kristal yang biasanya merupakan salah satu dari *dopan*. Profil ini berbeda dengan profil pola difraksi keluarga perak fosfat pada  $x = 0,5$ ,  $(AgI)_{0,5}(AgPO_3)_{0,5}$  hasil penelitian sebelumnya [11] yang menunjukkan puncak lebar berstruktur amorf. Dari puncak-puncak yang muncul diasumsikan bahwa puncak *Bragg* tersebut berasal dari bahan dasar pembentuk komposit superionik yakni garam *dopan*  $AgI$  yang bersesuaian dengan fasa  $\gamma-AgI$  sebagaimana telah dianalisis dengan metode *Rietveld* [9]. Selanjutnya untuk memudahkan penulisan komposit superionik  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  dengan  $x = 0,7$  dan  $x = 0,6$ , disingkat berturut turut AIX07 dan AIX06.

Namun demikian pada penelitian tersebut [9] analisis struktur belum dilakukan secara lengkap, dalam hal ini ukuran partikel dan regangan mikro belum ditentukan, oleh karena itu tujuan penelitian sekarang adalah melakukan analisis struktur secara konprehensif pada komposit gelas  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ .

Analisis struktur kristal, ukuran kristalit dan regangan mikro dalam presipitat superionik komposit gelas  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  dilakukan dengan metode *Rietveld*. Pengetahuan tentang struktur kristal perlu diketahui, karena sifat-sifat bahan superionik komposit tidak bisa dipahami dengan baik apabila strukturnya belum diketahui dengan jelas.

## TEORI

Prinsip dasar dari analisis struktur kristal suatu bahan dengan difraksi sinar-x adalah berdasarkan hukum *Bragg* [10]

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad \dots\dots\dots (1)$$

dimana :

- $\alpha$  = panjang gelombang sinar-x  
( $\text{Cu} = 1,540562 \text{ \AA}$ )
- $\theta$  = sudut difraksi yang menggambarkan posisi puncak
- $d_{hkl}$  = jarak antar bidang yang menggambarkan sistem, ukuran sel satuan dan indeks *Miller* bidang tersebut.

Struktur kristal suatu bahan menentukan pola difraksi suatu bahan tersebut, lebih spesifik lagi bahwa bentuk dan besar sel satuan menentukan kedudukan sudut suatu garis atau puncak difraksi dan susunan atom

(koordinat atom) dalam sel satuan yang menentukan intensitas relatif. Suatu bahan berbentuk kristal dapat dinyatakan dalam 2 (dua) bentuk yakni struktur kristal dan pola difraksi [10].

### Penentuan Ukuran Kristalit dan *Microstrain*

Pelebaran sebagai fungsi sudut *Bragg* merupakan kontribusi ukuran kristalit dan regangan mikro. Pengaruh ketergantungan sudut *Bragg* dari ukuran kristalit murni dan regangan mikro mengacu pada persamaan (2) dan persamaan (3). Williamson–Hall (1953)[10] telah membuat kurva antar  $\beta \cos \theta/\lambda$  terhadap  $\sin \theta/\lambda$  menghasilkan garis *slop*  $\eta$  dan intersep  $0,90 \lambda/D$ , dimana  $\beta$  adalah *FWHM* (*Full Width at Half Maximum Intensity*).

Regangan mikro  $\eta$  dan ukuran kristal  $D$  dari kristalit  $\gamma$ -AgI dalam matriks gelas dihitung berdasarkan persamaan Hall's [11] seperti berikut :

$$\frac{\beta \cos \theta}{\lambda} = \frac{0.90}{D} + 2\eta \frac{\sin \theta}{\lambda} \quad \dots\dots\dots (2)$$

Persamaan disederhanakan menjadi :

$$\beta \cos \theta = \frac{0.90\lambda}{D} + 2\eta \sin \theta \quad \dots\dots\dots (3)$$

Penggunaan program *RIETAN* dengan suatu model yang *simple* ini dapat menentukan regangan mikro  $\eta$ , dan ukuran kristalit  $D$  secara simultan.

## METODE PERCOBAAN

### Preparasi Sampel

Gelas komposit  $(AgI)_{0,6}(AgPO_3)_{0,4}$ , dan  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dibuat dengan mencampurkan bahan awal, AgI (Aesar, 99%),  $NH_4H_2PO_4$  (*Koso Chemical*, 98%) dan  $AgNO_3$  (*Sterm Chemical*, 98%) sesuai dengan perbandingan berat masing-masing, sebagaimana diuraikan pada pembuatan gelas [5]. Warna gelas/presipitat komposit yang diperoleh berwarna kuning transparan. Kedua preparasi sampel tersebut dilakukan di Laboratorium Preparasi Sampel, BKAN-PTBIN BATAN.

### Pengukuran dengan Difraksi Sinar-x

Cuplikan hasil sintesis kemudian dihaluskan untuk karakterisasi struktur kristalnya. Uji kualitas bahan komposit, pertama kali dilakukan dengan *XRD Philips* yang ada di BKAN-P3IB BATAN. Sedangkan perubahan dan sifat struktur terhadap pengaruh suhu, dan variasi  $x$  dilakukan dengan *XRD* di Departemen Fisika, Universitas Ibaraki, Jepang. Pada makalah ini hanya akan dibahas hasil pengukuran pada suhu ruang dengan variasi  $x=0,6$  dan  $x=0,7$  dan selanjutnya dianalisis dengan metode *Rietveld* menggunakan program *RIETAN*.

### Identifikasi Fasa (*Analisis Rietveld*)

Analisis atau identifikasi struktur kristal dengan metode *Rietveld* adalah suatu proses analisis dengan cara mengasumsikan suatu model struktur. Analisis *Rietveld* tidak membandingkan dengan pola-pola paduan lain, melainkan membuat model pola difraksi sendiri kemudian dibandingkan dengan hasil observasi.

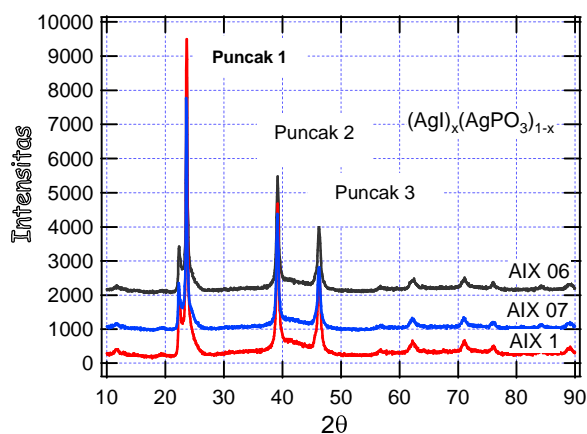
Dari proses ini diharapkan akan diperoleh informasi sistem struktur kristal yang mungkin dimiliki oleh bahan yang diamati. Proses ini disebut dengan proses identifikasi fasa. Selanjutnya berdasarkan model struktur yang dimasukkan (*reference*) dilakukan proses penghalusan (*refinement*) parameter-parameter struktur kristal sehingga diperoleh kesesuaian atau kecocokan antara data pola difraksi pengamatan dengan pola difraksi perhitungan. Prinsip inilah yang digunakan dalam metode analisis *Rietveld*.

Metode ini dilakukan dengan cara memasukkan data parameter struktur (sebagai acuan) seperti : faktor hamburan atom, simetri grup ruang, komposisi atom pembentuk fasa, parameter kisi, sudut  $\alpha$ , sudut  $\beta$ , dan sudut  $\gamma$ , dan posisi atom dari struktur kristal yang telah direkomendasikan.

Analisis struktur dilakukan dengan cara mengasumsikan 2 (dua) bahan gelas komposit  $(AgI)_{0,6}(AgPO_3)_{0,4}$  dan  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$ , adalah fasa  $\gamma$ -AgI, bersistem kristal Bravais kubik, simetri grup ruang kubik FCC, simetri grup ruang F-4 3 m No. 216.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

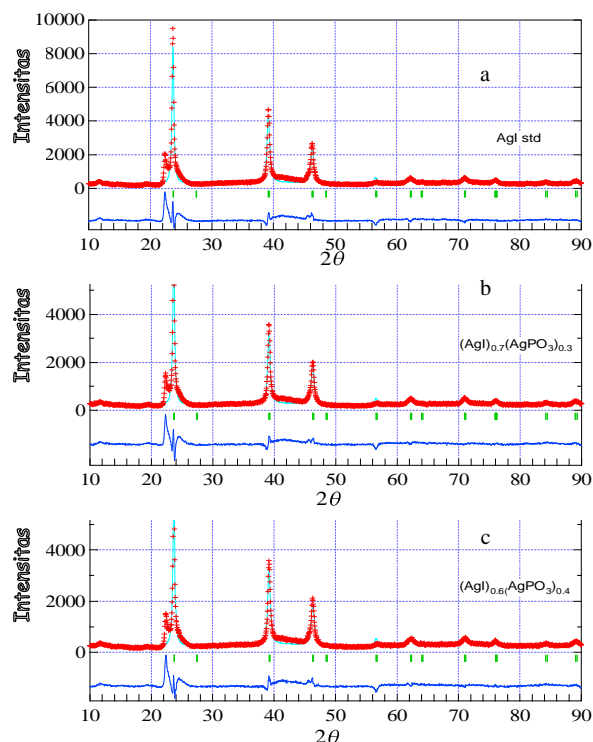
Gambar 1 menunjukkan pola difraksi gelas superionik komposit pada  $x = 1,0$  (AgI murni),  $x = 0,7$  dan  $x = 0,6$  memiliki pola difraksi yang sama. Pada  $x = 0,7$  dan  $0,6$  (suhu ruang) struktur yang terjadi merupakan campuran antara presipitat kristalin fasa  $\gamma$ -AgI dan gelas yang didominasi oleh kristalin. Sedangkan  $x=1$  merupakan kristalin AgI murni berfasa  $\gamma$ -AgI.



Gambar 1. Pola difraksi superionik komposit  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  pada  $x=0,6$ ,  $x=0,7$  dan  $x=1$  (*raw data*)

## Penentuan Struktur Kristal

Bentuk profil Gambar 2 menggambarkan kecocokan (*fitting*) intensitas difraktogram berkas Sinar-X antara hasil pengamatan dengan perhitungan. Tanda (+) adalah data hasil pengamatan, garis malar (--) adalah data perhitungan, garis vertikal dibawahnya (|) adalah posisi sudut puncak fasa atau indeks *Miller* dan garis mendatar (--) di bawah garis vertikal adalah gambaran selisih hasil pengamatan dengan perhitungan.



Gambar 2. pola difraksi superionik komposit  $(AgI)_x(NaPO_3)_{1-x}$  a) AgI standar, b)  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dan c)  $(AgI)_{0,6}(AgPO_3)_{0,4}$  hasil refinement dengan *RIETAN*.

Pada Gambar 2a adalah profil pola difraksi fasa  $\gamma$ -AgI dalam AgI standar hasil penghalusan diperoleh kualitas *fitting* dengan indeks reliabilitas, R pada  $R_{wp}$  sebesar 21,44 %, dengan *goodness-of-fit*, S = 1,6207. Gambar 2b adalah profil pola difraksi fasa  $\gamma$ -AgI dalam komposit  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  hasil akhir penghalusan dengan *RIETAN* diperoleh harga kualitas *fitting* dengan indeks reliabilitas, R pada  $R_{wp}$  sebesar 19,71 % dengan *goodness-of-fit*, S = 1,7876.

Gambar 2c adalah profil pola difraksi fasa  $\gamma$ -AgI di dalam bahan komposit  $(AgI)_{0,6}(AgPO_3)_{0,4}$ , bahwa atom Ag terdistribusi pada keadan posisi Wyckoff 24g dan hasil akhir *refinement* diperoleh harga kualitas *fitting* dengan indeks reliabilitas, R pada  $R_{wp}$  sebesar 19,26 % dengan data kesesuaian (*criteria-of-fit*) *goodness-of-fit*, S = 1,8270. Harga S maksimum yang diperbolehkan adalah 1,55 [15].

## Penghalusan Fasa $\gamma$ -AgI

Analisis struktur kristal (data XRD) fasa  $\gamma$ -AgI, telah dilaporkan oleh A. Purwanto dkk [16]. *Refinement* dilakukan dengan menggunakan dua model yakni data koordinat atom dengan simetri grup ruang F-4 3 m No.216. dan posisi Wyckoff 24g ( $Ag^+$ ) dan 4b (I). Data kualitas *fitting* standar AgI, AIX07 dan AIX06 hasil penghalusan *RIETAN*, dengan indeks reliabilitas, R disajikan pada Tabel 1.

Tabel 1. Data kualitas *fitting* standar AgI, AIX07 dan AIX06 hasil akhir penghalusan dengan *Rietan*.

Bahan	Kualitas <i>Fitting</i>					
	Rwp (%)	Rp	RI	RF	S	d
AgI	21,44	15,39	23,79	12,70	1,6207	0,1193
AIX07	19,71	14,08	22,60	13,71	1,7876	0,1899
AIX06	19,26	13,84	21,88	12,81	1,8270	0,1763

Keterangan: Rwp = R-bobot pola difraksi, Rp = R-pola difraksi, RI = R-intensitas Bragg, RF = R-faktor struktural, d = deviasi dan S = *goodness of fitting*.

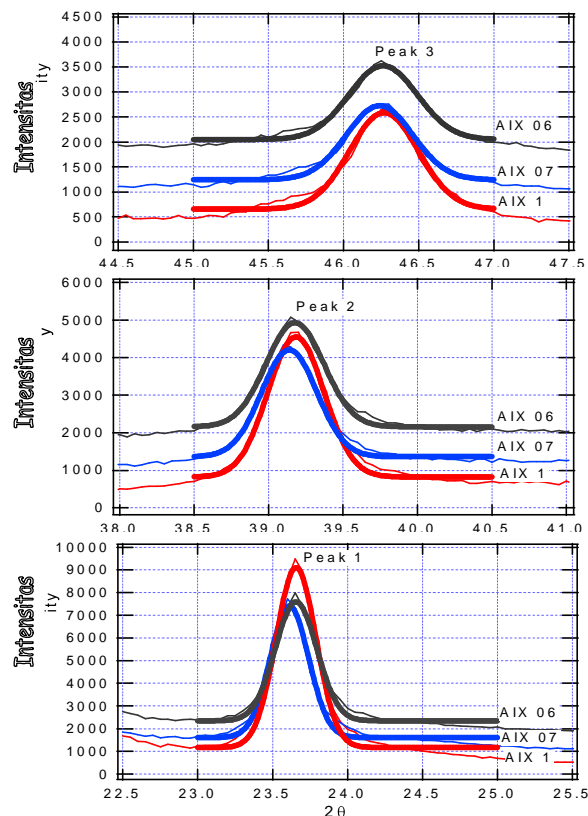
Penghalusan dengan program *RIETAN* dilakukan dengan cara mengasumsikan bahwa standar AgI, AIX07 dan AIX06 memiliki fasa yang sama yakni fasa  $\gamma$ -AgI bersistem kristal kisi *Bravais* kubik (FCC), grup ruang F-4 3 m No.216. Data parameter struktur dan posisi atom hasil akhir penghalusan ketiga bahan tersebut disajikan dalam Tabel 2.

Tabel 2. Data struktur dan posisi atom standar AgI, AIX07 dan AIX06 pada grup ruang : F -4 3 m (FCC), hasil penghalusan dengan *RIETAN*.

AgI Standar : Parameter kisi : a =b= c = 6,506(1), V= 275,4(1)Å <sup>3</sup> ,					
Atom/Ion	Posisi Wyckoff	x	y	z	B isotropik
$Ag^+$	24g	0,00	0,00	0,00	13,3(9)
I	4b	0,25	0,25	0,25	10,8(9)
AIX07 : Parameter kisi : a =b= c = 6,503(2), V= 274,9(1)Å <sup>3</sup> ,					
$Ag^+$	24g	0,00	0,00	0,00	5,3(9)
I	4b	0,25	0,25	0,25	4,4(7)
AIX06 : Parameter kisi : a =b= c = 6,500(2), V= 274,6(1)Å <sup>3</sup> ,					
$Ag^+$	24g	0,00	0,00	0,00	5,2(8)
I	4b	0,25	0,25	0,25	3,8(6)

Hasil penghalusan ini tidak memuaskan, hal ini disebabkan oleh data statistik yang tidak baik dan bahan tersebut tersolidifikasi dalam matriks gelas, namun data hasil perhitungan menunjukkan kesesuaian dengan data pengamatan. Dengan demikian fasa yang tidak diketahui telah teridentifikasi. Harga S maksimum yang baik adalah 1,55.

Untuk lebih jelas Gambar 2 menunjukkan masing-masing puncak *Bragg* ke 1, ke 2 dan ke 3 dari pola difraksi AgI (AIX 1) dan superionik komposit, AIX  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  raw data, AIX06, x = 0,6 (garis warna hitam), AIX07, x = 0,7 (garis warna biru) dan AIX 1 pada x = 1 (garis warna merah) hasil analisis *Gauss fitting*. Dari masing-masing ke 3 puncak *Bragg*



Gambar 2. Puncak Bragg superionik komposit pada x = 0,6, x= 0,7 dan x = 1 hasil analisis Gauss fitting

tersebut nampak bahwa pada x = 0,6 dan x = 0,7 sudut 2θ bergeser ke arah sudut yang lebih rendah dan pelebaran puncak Bragg dibanding dengan sudut puncak 2θ pada x = 1,0.

Ukuran kerital, D dan regangan mikro η fasa γ-AgI dalam matriks gelas dihitung berdasarkan persamaan Hall's [11] seperti pada persamaan (2) berikut:

$$\frac{\beta \cos \theta}{\lambda} = \frac{0.90}{D} + 2\eta \frac{\sin \theta}{\lambda}$$

Perhitungan regangan mikro diperoleh dari *slope* menggunakan persamaan yang telah disederhanakan persamaan (3) :

$$\beta \cos \theta = \frac{0.90\lambda}{D} + 2\eta \sin \theta$$

Data luaran program RIETAN dengan suatu model yang sederhana ini dapat dihitung regangan mikro η , dan ukuran kristalit D secara simultan.

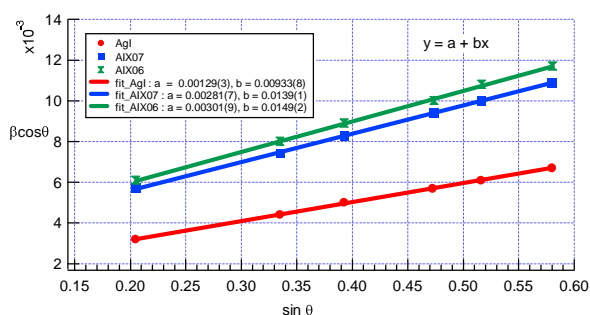
Data refleksi Bragg yang muncul hasil penghalusan Rietan fasa γ-AgI dalam AgI standar, (AgI)<sub>0,7</sub>(AgPO<sub>3</sub>)<sub>0,3</sub>, dan (AgI)<sub>0,6</sub>(AgPO<sub>3</sub>)<sub>0,4</sub> disajikan pada Tabel 3.

Pada Tabel 3 menunjukkan bahwa pada bahan AIX07 dan AIX06, refleksi Bragg pada bidang (111), (220), (311), (400), (331) dan (422) harga sudut 2θ dan FWHM meningkat bila disbanding dengan AIX 1 (AgI) pada refleksi Bragg bidang yang sama. Perubahan ini disebabkan proses pendinginan cepat dan kristalit berada dalam matriks gelas dan bahan ini didominasi oleh kristalit karena berada di atas batas kelarutan.

Gambar 3 menunjukkan hubungan antara β cos θ dengan sin θ untuk bidang (111), (220), (311), (400), (331) dan (422) dari puncak-puncak difraksi bahan AIX 06, AIX07 dan AIX1,0 (kristalin γ-AgI) pada suhu ruang.

Tabel 3. Data refleksi Bragg, ukuran partikel dan regangan mikro hasil penghalusan RIETAN

Bahan	hkl	2θ	θ	FWHM (β) (2θ°)	FWHM (β) (Radian)	βcos θ	Sin θ
AgI	(111)	23,655	11,8275	0,1891	0,0033	0,0032	0,2049
	(220)	39,127	19,5635	0,2688	0,0047	0,0044	0,3348
	(311)	46,239	23,1195	0,3082	0,0054	0,0050	0,3926
	(400)	56,351	28,1755	0,3697	0,0065	0,0057	0,4722
	(331)	62,135	31,0675	0,4070	0,0071	0,0061	0,5160
	(422)	70,899	35,4495	0,4675	0,0082	0,0067	0,5800
AIX07	(111)	23,679	11,8395	0,3307	0,0058	0,0057	0,2052
	(220)	39,171	19,5755	0,4537	0,0079	0,0074	0,3350
	(311)	46,413	23,1335	0,5151	0,0090	0,0083	0,3929
	(400)	56,597	28,2830	0,6114	0,0107	0,0094	0,4738
	(331)	62,174	31,0870	0,6685	0,0117	0,0100	0,5163
	(422)	70,945	35,4725	0,7659	0,0134	0,0109	0,5803
AIX06	(111)	23,690	11,8450	0,3565	0,0062	0,0061	0,2053
	(220)	39,169	19,5845	0,4886	0,0085	0,0080	0,3352
	(311)	46,289	23,1445	0,5547	0,0097	0,0089	0,3931
	(400)	56,594	28,2970	0,6503	0,0114	0,0100	0,4740
	(331)	62,206	31,1030	0,7197	0,0126	0,0108	0,5166
	(422)	70,983	35,4915	0,8245	0,0144	0,0117	0,5806
Factor : FWHM (radian) = FWHM/180 x π = FWHM x 0.01746							



Gambar 3. Hall's Plot pada puncak-puncak difraksi bahan AIX 06, 07 dan AIX 1,0 (AgI) hasil penghaluan dengan program Rietan.

Harga  $\eta$  diperoleh dari persamaan (3), pengukuran regangan mikro diperoleh dari slops dari persamaan linier  $y = a + bx$ ,  $a = \text{interseption}$  dimana ukuran kristal dapat dihitung dan  $b = \text{gradient}$  adalah regangan mikro dihitung dengan menggunakan program Igor Pro. Terlihat bahwa  $\gamma$ -AgI dalam gelas memiliki harga regangan mikro lebih besar yakni  $4,665 \times 10^{-3}$  pada AIX06, dan  $6,95 \times 10^{-3}$  pada AIX07 dibanding dengan  $\gamma$ -AgI dalam AgI murni yakni  $7,45 \times 10^{-3}$ . Sedangkan ukuran kristal,  $D$  menurun yakni  $461 \text{ \AA}$  pada AIX06, dan  $493 \text{ \AA}$  pada AIX07 dibanding dengan fasa  $\gamma$ -AgI dalam AgI murni yakni  $1075 \text{ \AA}$ . Hal ini disebabkan telah terjadi peregangan terhadap butir kristal AgI pada saat proses nukleasi terjadi sewaktu pendinginan cepat, karena adanya stress (tegangan) pada permukaan antara AgI dengan gelas matriks selama proses pendinginan cepat.

## KESIMPULAN

Dari pengamatan pola difraksi sinar-x dan data parameter struktur serta data refleksi Bragg hasil penghaluan dengan program Rietan dapat disimpulkan adalah sebagai berikut :

1. Analisis struktur kristal dalam superionik komposit  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ , pada  $x = 0,7$  dan  $x = 0,6$  dengan metoda Rietveld telah berhasil dilakukan. Hasilnya menunjukkan bahwa presipitat tersebut teridentifikasi dari fasa  $\gamma$ -AgI simetri grup ruang  $F-43m$  No 216, FCC dengan parameter kisi  $a = 6,502(2)$  pada  $x = 0,7$  dan parameter kisi  $a = 6,500(2)$  pada  $x = 0,6$ . Dengan demikian superionik komposit  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ , terdiri dari fasa  $\gamma$ -AgI sebagai presipitat dan matriks gelas  $(AgPO_3)_n$  fasa amorf.
2. Regangan mikro ( $\eta$ ) diperoleh untuk  $x = 1, 0,7$  dan  $x = 0,6$ , masing-masing  $4,655 \times 10^{-3}$ ,  $6,95 \times 10^{-3}$  dan  $7,45 \times 10^{-3}$ . Ukuran partikel ( $D$ ) masing-masing adalah  $1075 \text{ \AA}$ ,  $493 \text{ \AA}$  dan  $461 \text{ \AA}$ . Turunnya harga  $D$  dan parameter kisi kristal FCC dan naiknya harga  $\eta$  pada  $x = 0,7$  dan  $x = 0,6$ , akan meningkatkan mobilitas ionik dengan demikian konduktivitas meningkat pula. Proses solidifikasi AgI cair kedalam matriks gelas  $AgPO_3$  menurunkan parameter kisi dan ukuran partikel yang mengakibatkan naiknya regangan mikro dan konduktivitas.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis menyampaikan ucapan terimakasih kepada Prof. T. Sakuma atas bantuan pengukuran data Difraksi Sinar-X di Ibaraki University. Penulis juga menyampaikan terimakasih kepada Kepala PTBIN, kepada Ka BIN, kapok Bateri Nuklir, dan KPTFN serta semua pihak yang telah membantu dan bimbingan serta dorongan hingga selesainya karya tulis ini.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. E. KARTINI, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **1** (3) (2000)
- [2]. E. MUSHAFAAH., Sintesis, Karakterisasi Struktur dan Sifat Termal Pada Bahan Konduktor Superionik Berbasis Gelas  $(Ag_2S)_x(AgPO_3)_{1-x}$ , *Skripsi*, Jurusan Fisika, FMIPA, IPB (2002)
- [3]. TAKASHI, H., Y. HIKI, T. SAKUMA and Y. MORRI, *Solid State Ionic*, **90** (1996) 125-128.
- [4]. M.Z.A. MUNSHI, *Handbook of Solid State Batteries & Capacitor*, World Scientific, Singapore (1995)
- [5]. E. KARTINI, Sintesis, Karakterisasi dan Pengembangan Bahan Konduktor Superionik Berbasis Gelas, *Laporan RUT VI Bidang Ilmu Bahan*, KMRT, Dewan Riset Nasional, (2000)
- [6]. J. SWENSON, A. MATIC, C. GEJKE and L. BORJENSON, *Phys Rev. B* **60** (1999) 12203
- [7]. E. KARTINI, T. PRIYANO, S. YUSUF, N. INDAYANINGSIH AND M.F. COLLINS, *Canadian Assosiation of Physicist Congress*, Waterloo, Canada (1998)
- [8]. M. TATSUMISAGO, Y.SHINKUMA and T.SAITO and T. MINAMI, *Solid State Ionics* **13** (1984) 293
- [9]. E.KARTINI dan M.F. COLLINS, *Physica B*, **467** (2000), 276-278
- [10]. B.D. CULLITY AND S.R.STOCK, Elements Of X-Ray Diffraction Third Edition, *Prentice Hall Upper Saddle River*, New Jersey 07458, (2001)
- [11]. TSUTOMU MINAMI, TOSHIHARU SAITO, and MASAHIRO TATSUMISAGO, *Solid State Ionic*, **86-88** (1996) 415-420
- [12]. THOSHIBARU SAITO, MASAHIRO TATSUMISAGO and TSUTOMU MINAMI, *Solid State Ionics*, **61** (1993) 285-291
- [13]. ATTILIO IMMIRZI and WILLIAM PORZIO, *Acta Cryst.* **B38** (1982), 2788-2792
- [14]. E. KARTINI, S. PURNAMA, A. SUGIHARTO, T. SAKUMA, D.W. NINGSIH dan NURIANUN, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **4** (3) (2003)
- [15]. R.A. YOUNG, *The Rietveld Method*, International Union of Crystallography Oxford University, (1996)
- [16]. A. PURWANTO, E.KARTINI, T.SAKUMA, M.F.COLLINS and T.KAMIYAMA, *Materials Research Bulletin*, **40** (2000) 47-54