

## KARAKTERISASI PRESIPITAT AgI PADA $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$ DENGAN TEKNIK HAMBURAN NEUTRON SEBAGAI FUNGSI SUHU

E. Kartini

*Puslithang Iptek Bahan, Badan Tenaga Nuklir Nasional,  
PPTA Serpong, Tangerang 15314*

### ABSTRAK

**KARAKTERISASI PRESIPITAT AgI PADA  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  DENGAN TEKNIK HAMBURAN NEUTRON SEBAGAI FUNGSI SUHU.** Gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  telah dibuat melalui metoda pendinginan cepat. Pada suhu ruang, struktur yang terjadi merupakan campuran antara gelas  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dan presipitat kristalin  $\beta$ -AgI. Secara *insitu* telah dipelajari perubahan struktur yang terjadi pada saat pemanasan dari suhu ruang sampai suhu diatas suhu fasa transisi  $\beta \rightarrow \alpha$  AgI, dengan metoda hamburan neutron. Percobaan dilakukan dengan menggunakan *High Resolution Powder Diffractometer (HRPD)* pada *Nuclear Research Reactor, Chalk River Laboratory, Canada*. Hasil percobaan menunjukkan adanya transisi ke fasa  $\alpha$ -AgI pada suhu 435 K pada saat pemanasan, sedangkan pada saat pendinginan suhu transisi dari fasa  $\alpha \rightarrow \beta$  AgI diperoleh pada suhu 415 K. Pada bagian gelas, yaitu pada puncak tajam difraksi pertama dengan daerah  $Q \sim 0,7 \text{ \AA}^{-1}$  tampak adanya kristalisasi pada suhu sekitar 390 K, yang kemudian meleleh pada suhu 544 K, pada saat pemanasan. Pada penelitian ini telah diamati pula perubahan posisi yang terjadi baik pada puncak Bragg maupun pada puncak gelas selama proses ini berlangsung.

**Kata kunci :** Gelas konduktor superionik, presipitat, hamburan neutron

### ABSTRACT

**CHARACTERISATION OF THE AgI PRECIPITATE IN  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  BY NEUTRON SCATTERING TECHNIQUE AS A FUNCTION OF TEMPERATURE.** The superionic conductor glass  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  has been prepared by rapid quenching method. At ambient temperature the structure are mixture of glass and crystalline precipitate of  $\beta$ -AgI. The temperature dependence of the structure has been studied from room temperature up to the temperature above the glass transition temperature by using a High Resolution Powder Diffractometer (HRPD) at Nuclear Research Reactor, Chalk River Laboratory, Canada. The results show that there is a phase transition to  $\alpha$ -AgI at 435 K on heating, while on cooling the phase transition from  $\alpha \rightarrow \beta$  AgI was obtained at 415 K. In the glass part at  $Q \sim 0,7 \text{ \AA}^{-1}$ , the first sharp diffraction peak (FSDP) becomes crystal at 390 K, followed by melts at 544 K. In this paper, the variation of Bragg and glass peak with the temperature has also been observed during this process.

**Key words :** Superionic conductor glass, precipitate, neutron scattering

### PENDAHULUAN

Bahan gelas konduktor superionik adalah padatan yang mempunyai konduktifitas ion sangat tinggi yaitu  $\sigma > 10^{-2} \text{ S/cm}$  pada suhu ruang. Dengan keunggulannya ini, bahan superionik banyak digunakan dalam pembuatan sel elektrokimia, sel bahan bakar, padatan elektrolit atau sensor [1-4]. Padatan elektrolit memiliki keuntungan dibanding dengan cairan elektrolit yaitu bebas dari kebocoran, kekurangan arus, juga lebih aman dan mudah dibawa. Gelas elektrolit memiliki banyak keuntungan dan kemudahan dibandingkan dengan padatan elektrolit berbasis keramik atau polikristal, yaitu memiliki sifat konduktifitas yang tinggi pada suhu kamar, bersifat isotropik, tidak memiliki batas butir, daerah

komposisi yang lebar serta mudah difabrikasi dan divariasi bentuknya. Keunggulan sifat dari konduktor superionik berbasis gelas  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  dibandingkan dengan padatan superionik lain, seperti AgI, terutama konduktifitasnya tinggi pada hampir seluruh daerah temperatur. Konduktifitas tinggi pada  $\alpha$ -AgI hanya diperoleh pada suhu tinggi ( $> 147 \text{ }^\circ\text{C}$ ) [5-7].

Hasil karakterisasi struktur secara mikroskopik baik dengan metoda difraksi sinar-x dan hamburan neutron, menunjukkan bahwa cuplikan dalam keadaan amorf untuk harga  $x < 0,55$ ; dimana solidifikasi AgI ke dalam leburan  $AgPO_3$  terjadi. Untuk  $x > 0,55$  terjadi presipitat AgI pada matriks gelas, sehingga strukturnya adalah

sebagian kristal dan sebagian gelas [8-13]. Pada makalah ini akan diuraikan hasil penelitian gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  pada berbagai suhu. Pada suhu ruang struktur yang terjadi merupakan campuran antara gelas  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dan presipitat kristalin  $\beta$ -AgI. Perubahan struktur yang terjadi pada saat pemanasan dari suhu ruang sampai di atas suhu transisi fasa  $\beta \rightarrow \alpha$  AgI akan dipelajari secara *insitu*, dengan metoda hamburan neutron. Percobaan dilakukan dengan menggunakan *High Resolution Powder Diffractometer (HRPD) pada Nuclear Research Reactor, Chalk River Laboratory, Canada*.

## TEORI

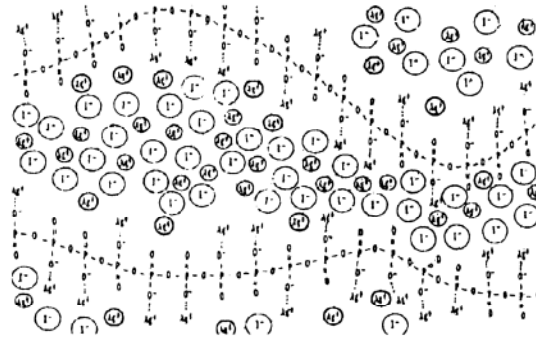
Pada umumnya gelas konduktor superionik terdiri dari tiga komponen : pembentuk jaringan gelas (*a glass network former*), oksida logam (*metal oxide*) atau sulfida logam (*metal sulfide*) yang berfungsi sebagai pengubah jaringan gelas, dan sisipan garam (*dopant salt*) seperti AgI [1-4]. Pada penelitian ini telah dipilih keluarga amorf *silver iodide-silver oxysalt electrolytes* yang dibuat melalui pendinginan cepat (*rapid quenching*) dengan berbagai komposisi mol% AgI-Ag<sub>2</sub>O-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, dimana Ag<sub>2</sub>O adalah pembentuk gelas (*a glass former*) terhadap oxysalt P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, dengan berbagai konsentrasi AgI (*dopant salt*). Gelas konduktor superionik yang terbentuk adalah  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ .

Pada saat ini banyak perdebatan mengenai beberapa hal, diantaranya mengenai struktur dari komposisi  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$ .

- (1) Mengenai anggapan bahwa ada dua populasi ion Ag<sup>+</sup> yang berbeda, yaitu ion-ion bebas yang berhubungan dengan AgI seperti pada kristalin  $\alpha$ -AgI dan ion-ion tak bebas yang terikat pada jaringan fosfat. *Random site model* [14] mengasumsikan bahwa tidak ada perbedaan diantara komponen AgI, tetapi mengusulkan adanya distribusi energi aktivasi untuk proses difusi ion-ion Ag<sup>+</sup>, sedangkan *cluster percolation model* [15] mengasumsikan adanya pembentukan mikro domain AgI pada daerah komposisi AgI yang tinggi.
- (2) Mengenai jumlah fraksi ion-ion Ag<sup>+</sup> yang berpartisipasi dalam proses dan mendominasi konduksi, ketika ada perbedaan.
- (3) Mengenai struktur yang terbentuk ketika ion Ag<sup>+</sup> bebas terlokasi.

Kajian mengenai struktur dan gerakan dari ion-ion bebas telah dipelajari sebagai fenomena relaksasi dengan *light scattering, conductometric, dielectric*, metoda mekanik dan lain-lain [13-15]. Metoda-metoda ini menjelaskan energi aktivasi dari konduktivitas ion-ion. Namun masih banyak masalah lain yang belum terungkap.

Gambar 1. menunjukkan salah satu skema representasi dua dimensi dari struktur gelas  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  untuk komposisi AgI yang tinggi [16].



Gambar 1. Model konduksi superionik 'mixed electrolyte tissue to amorphous AgI aggregate' dari gelas  $(AgI)_x(AgPO_3)_{1-x}$  dengan komposisi AgI yang tinggi [16].

Secara alamiah daerah berisi hanya ion-ion Ag<sup>+</sup> dan I<sup>-</sup> terbentuk di dalam gelas seperti dalam gambar 1, karena AgPO<sub>3</sub> memiliki struktur rantai dan tidak dapat banyak terdispersi di dalamnya. *Region* ini tentu saja tidak akan hadir pada komposisi AgI yang rendah, atau akan muncul sebagian pada suatu komposisi, dan bertambah dengan kenaikan komposisi AgI, sehingga pada akhirnya akan terjadi kristalisasi baik  $\alpha$ ,  $\beta$ , atau  $\gamma$ -AgI pada komposisi di atas  $x=0,75$  [4]. Dengan alasan ini, sangat diharapkan bahwa ion-ion Ag<sup>+</sup> dikelilingi oleh ion-ion I<sup>-</sup> yang menunjukkan posisi tak teratur (*disorder*) sebagaimana pada kristalin  $\alpha$ -AgI dan kurang lebih terlokasi pada keadaan yang sama, dan ada hubungannya dengan penurunan harga  $\beta$ -transisi gelas [16]. Nakayama dkk. [16], mengusulkan model struktur gelas tersebut, yaitu sebagai 'mixed electrolyte tissue to amorphous AgI aggregate' dari sudut pandang konduksi ionik karena adanya ketidakteraturan posisi dari ion-ion Ag<sup>+</sup> dan *region* dari kumpulan amorfous AgI pada gelas dengan komposisi AgI yang tinggi. Uraian model tersebut sebagai berikut, yaitu konduksi ionik dapat diamati walaupun di dalam gelas AgPO<sub>3</sub>. Ini menunjukkan bahwa sejumlah ketidakteraturan posisi ion-ion Ag<sup>+</sup> hadir, walaupun di dalam gelas tanpa komponen AgI, tetapi harga energi aktivasi  $\Delta\epsilon_a$  terlalu besar untuk derajat ketidakteraturan secara makroskopis. Pada saat komponen AgI ditambah, ion-ion Ag<sup>+</sup> dan I<sup>-</sup> menyisip diantara jaringan gelas AgPO<sub>3</sub> dan keberadaan ion-ion I<sup>-</sup> mengurangi besaran  $\Delta\epsilon_a$ . Pada komposisi AgI yang rendah, semakin banyak daerah konduktif di dalam gelas yang membentuk sejenis lapisan elektrolit campuran terdiri dari -P-O-, ion-ion I<sup>-</sup>, dan Ag<sup>+</sup> diantara jaringan gelas -P-O- dan tanpa ion-ion Ag<sup>+</sup> yang dikelilingi oleh ion-ion I<sup>-</sup>. Masih dalam hal ini derajat ketidakteraturan ion-ion Ag<sup>+</sup> masih terlalu kecil untuk diamati secara makroskopis. Jika jumlah komponen AgI mencapai suatu komposisi, biasanya  $x_c \approx 0,35$ , kumpulan amorfous AgI mulai muncul di dalam lapisan pertama sebagai 'cluster', dan kemudian dengan penambahan komposisi AgI terbentuk sejenis *texture* dari kumpulan amorfous AgI. Pada komposisi AgI yang tinggi, kedua ukuran dari kumpulan AgI dan fraksi dari ion-ion Ag<sup>+</sup> di dalam

kumpulan, yaitu yang dikelilingi ion-ion I, semakin jelas dan derajat ketidakteraturan juga bertambah karena berkurangnya kedua harga  $\Delta\epsilon_a$  dan  $\Delta\epsilon_c$ . Dalam hal ini, konduksi ionik didominasi oleh ion-ion  $Ag^+$  di dalam kumpulan amorfous AgI pada daerah komposisi ini. Adapun sifat dari ion-ion bebas  $Ag^+$  diperkirakan mendekati sifat dari *bulk* amorfous AgI.

## TATA KERJA

Untuk mengetahui lebih jauh sifat mikroskopik dari bahan gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$  telah dilakukan pengambilan data hamburan neutron menggunakan Difraktometer Neutron Resolusi Tinggi (HRPD). Berkas neutron polikromatis direfleksikan menggunakan monokromator Si(531) untuk mendapatkan panjang gelombang monokromatis pada 1,257 Å. Secara prinsip proses hamburan neutron yang terjadi bersifat elastik, dimana tidak terjadi perubahan energi pada cuplikan selama proses pengukuran, sehingga kita dapat mentransformasikan bentuk besaran sudut hamburan ( $2\theta_s$ ) menjadi besaran perpindahan momentum (*momentum transfer*) melalui hubungan  $Q = 4\pi \sin \theta_s / \lambda$ . Hasil pola struktur faktor bahan gelas biasanya dipresentasikan sebagai hubungan cacahan neutron yang dihambur oleh cuplikan terhadap jangkauan sudut hamburan ( $2\theta_s$ ) atau dengan besaran Q. Faktor struktur ini ditulis sebagai S(Q).

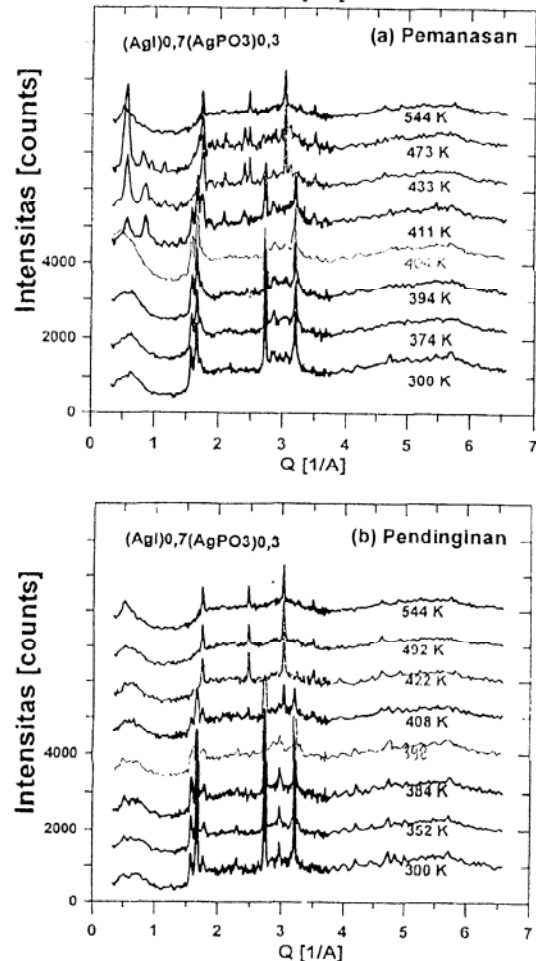
Percobaan dilakukan dengan menggunakan HRPD- pada DUALSPEC-spectrometer, di *Chalk River Laboratory, Canada*. Pengukuran dilakukan pada berbagai suhu mulai suhu kamar 300 K, dimana cuplikan berbentuk solid / gelas sampai pada suhu 550 K di atas suhu transisi gelas. Digunakan multidetektor berjangkauan sudut  $2\theta \sim 6^\circ$  sampai  $86^\circ$ ; dan panjang gelombang 1,257 Å yang kemudian ditransformasi menjadi  $Q = 0,35 \text{ \AA}^{-1}$  sampai  $6,55 \text{ \AA}^{-1}$ . Gelas yang digunakan dalam percobaan berbentuk silinder, yang dimasukkan kedalam wadah vanadium. Digunakannya bahan vanadium ini karena tidak memberikan cacahan yang bersifat koheren terhadap hasil difraksi, sehingga pola yang diperoleh benar-benar berasal dari cuplikan gelas. Tetapi tentu saja perlu dilakukan koreksi terhadap cacahan dari latar belakang, wadah vanadium, koefisien absorpsi serta hamburan dari tungku pemanas (*furnace*) [11].

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 2 menunjukkan difraktogram dari cuplikan gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$  pada berbagai suhu, pada saat pemanasan dan pendinginan. Pada suhu ruang struktur yang terjadi merupakan campuran antara gelas  $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$  dan presipitat kristalin b-AgI. Hal ini telah dikonfirmasi dengan data struktur kristal AgI pada suhu ruang [10], dimana puncak-puncak *Bragg* bersesuaian baik intensitas maupun posisinya. Untuk memudahkan analisa selanjutnya, pola

difraktogram tersebut akan dibagi menjadi tiga bagian daerah Q, yaitu :

1. untuk  $Q \sim 0,7 \text{ \AA}^{-1}$ , dimana terdapat puncak difraksi tajam pertama,
2. untuk  $1,5 \text{ \AA}^{-1} < Q < 3,5 \text{ \AA}^{-1}$  dimana terjadi presipitat kristalin AgI pada jaringan gelas  $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$ ,
3. untuk  $Q \sim 5,6 \text{ \AA}^{-1}$  dimana puncak amorf tampak jelas, dan berasal dari jaringan fosfat.



Gambar 2. Pola difraksi neutron dari gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$  pada berbagai suhu, pada saat pemanasan (a) dan pada saat pendinginan (b).

## Variasi Puncak Tajam Difraksi Pertama $(AgI)_{0.7}(AgPO_3)_{0.3}$ Terhadap Suhu

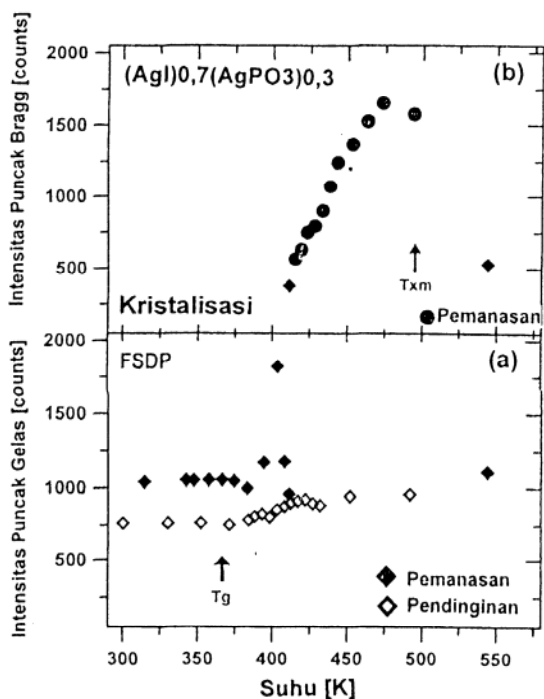
Fenomena baru yang terungkap pada penelitian ini, adanya puncak difraksi tajam pertama (*first sharp diffraction peak*) pada daerah momentum transfer  $Q \sim 0,7 \text{ \AA}^{-1}$  dimana puncak ini tidak muncul pada gelas tanpa doping ( $AgPO_3$ ). Puncak ini disebabkan adanya korelasi struktur pada jangkauan orde menengah dari *micro-cluster* Ag dan I yang terbentuk di dalam gelas [14-16]. *Micro-cluster* memiliki skala panjang (*length scale*)  $d = 2\pi/Q \sim 10 \text{ \AA}$  dan panjang korelasi (*correlation length*) atau periodisitas di dalam gelas, yaitu  $D = 2/\Delta Q \sim 25 \text{ \AA}$ , dimana Q dan  $\Delta Q$  berturut-turut adalah

posisi dan lebar puncak difraksi pertama. Puncak ini berasal dari ikatan kovalen pada jaringan fosfat  $PO_4$  yang berbentuk rantai tetrahedral, yang melebar dan berfluktuasi karena adanya sisipan dari garam dopan AgI [16]. Secara ikatan kimia struktur kristal ini terdiri dari satuan tetrahedral  $PO_4$  yang membentuk jaringan (*random network*) yang berbagi dua sudut (*bridging oxygens-BO*) di dalam gelas. Dua sudut lagi tidak terikat (*Non-bridging oxygen - NBO*), dan ikatan dari rantai fosfat terjadi jika ada ikatan ionik oleh  $Ag^+$  pada NBO. Adapun konduktivitas yang tinggi pada gelas konduktor ini, disebabkan rantai fosfat lebih menjauh karena jumlah ion-ion  $Ag^+$  yang menjembatani dua *Non Bridging Oxygen (NBO)* menurun, padahal secara keseluruhan rantai fosfat ini harus tetap. Model superionik konduktor gelas ini telah dilakukan melalui simulasi dengan metoda Reverse Monte Carlo oleh J.D. Wicks dkk [15]. Pada bagian ini kami hanya akan menunjukkan perubahan sifat puncak tajam difraksi pertama ini terhadap perubahan suhu, yang belum pernah diteliti sebelumnya.

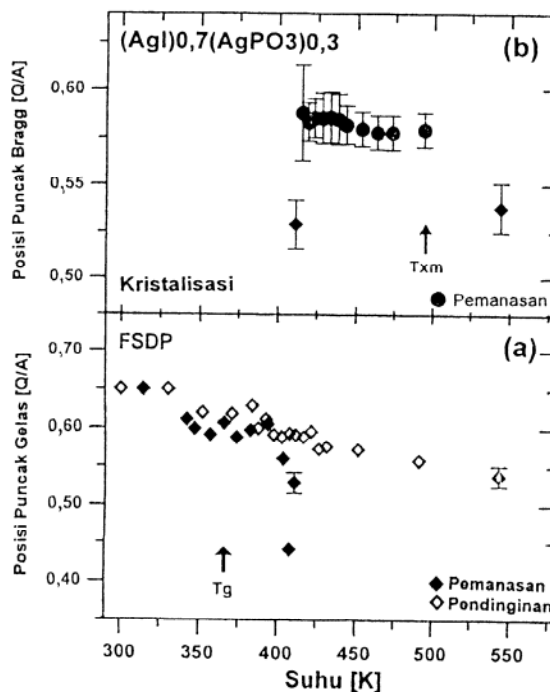
Gambar 3a menunjukkan intensitas FSDP sebagai fungsi dari suhu baik pada waktu pemanasan (*heating*) maupun pendinginan (*cooling*). Pada saat pemanasan (simbol wajik penuh) dari suhu ruang sampai 10 derajat di atas suhu transisi gelas  $T_g \sim 368$  K [8], tidak terjadi perubahan intensitas, kemudian terjadi sedikit penurunan, yang dilanjutkan dengan kenaikan intensitas yang tajam (mencapai dua kali intensitas semula) pada suhu 420 K, dimana pola difraksi masih dalam bentuk amorf (puncak lebar). Kemudian intensitas ini menurun dan kembali ke

keadaan semula, sebelum akhirnya terjadi kristalisasi pada gelas fosfat (lihat gambar 2 pada suhu 411 K). Kristalisasi ini ditunjukkan dengan terbentuknya beberapa puncak Bragg pada daerah  $Q < 1,0 \text{ \AA}^{-1}$ . Secara independen dari proses yang terjadi lainnya, salah satu puncak Bragg ini kemudian intensitasnya bertambah, sebagaimana ditunjukkan pada gambar 3b (harga intensitas sudah dikurangi cacahan latar belakang / amorf) dan mencapai puncaknya pada suhu 473 K, sebelum akhirnya kristal ini "meleleh" pada suhu 544 K. Sebagai bukti bahwa proses "kristalisasi" ini bukan hanya berasal dari presipitat AgI, dapat ditunjukkan pada gambar 2 untuk suhu 544 K. Puncak Bragg yang berasal dari presipitat AgI masih tetap berada pada fasa  $\alpha$ -AgI, sedangkan puncak Bragg pada  $Q < 1,0$  meleleh, dan dalam keadaan cair melebar seperti pada keadaan gelas. Pada saat pendinginan tidak terjadi "kristalisasi" pada puncak ini, bentuknya tetap melebar seperti dalam keadaan amorf dan solidifikasi yang terjadi cukup lambat, sehingga tidak terjadi perubahan yang signifikan.

Gambar 4 menunjukkan posisi dari puncak difraksi tajam pertama sebagaimana diuraikan di atas, sebagai fungsi dari suhu. Pada mulanya posisi FSDP terdapat pada  $Q \sim 0,65 \text{ \AA}^{-1}$  kemudian  $0,6 \text{ \AA}^{-1}$  dan terus menurun sampai pada  $0,50 \text{ \AA}^{-1}$  pada saat intensitas puncak difraksi ini naik dengan tajam. Posisi puncak kembali bergeser ke arah  $Q$  yang lebih besar, yaitu  $0,53 \text{ \AA}^{-1}$  sampai pada akhirnya terjadi kristalisasi. Puncak Bragg yang diamati di sini terletak pada  $Q \sim 0,58 \text{ \AA}^{-1}$  dan tidak banyak berubah pada saat terjadi pertumbuhan kristal, sampai akhirnya



Gambar 3. Variasi intensitas puncak tajam difraksi pertama (FSDP) terhadap suhu. (a) menunjukkan pada saat puncak tersebut dalam keadaan amorf (gelas / cairan) sedangkan (b) menunjukkan pertumbuhan kristal pada daerah tersebut.



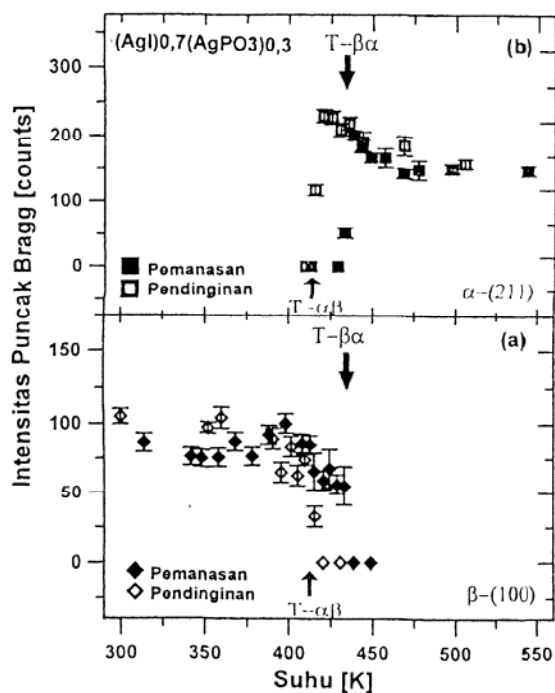
Gambar 4. Variasi posisi puncak tajam difraksi pertama (FSDP) terhadap suhu. (a) menunjukkan pada saat puncak tersebut dalam keadaan amorf (gelas / cairan) sedangkan (b) menunjukkan pertumbuhan kristal pada daerah tersebut.

kembali pada posisi semula pada saat kristal mencair. Perubahan drastis terjadi pada suhu 411 K, saat puncak difraksi naik dengan tajam dan posisinya bergeser ke arah Q yang lebih kecil, mungkin karena adanya perubahan fasa dari keadaan cairan superdingin menjadi kristal, pada bagian gelas tersebut. Namun fenomena ini masih harus dibuktikan dengan metoda percobaan lainnya.

### Presipitat AgI Pada Gelas $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$

Pada bagian ini yang akan diamati adalah perubahan yang terjadi pada presipitat AgI di dalam gelas jika diperlakukan pemanasan ataupun pendinginan. Daerah yang diamati berada pada rentang  $1,5 < Q < 3,5 \text{ \AA}^{-1}$ . Pada gambar 2 pola difraksi yang terjadi pada suhu ruang, menunjukkan adanya hamburan Bragg (*Bragg scattering*) bertumpang-tindih (*superimpose*) dengan bagian gelas (*diffuse scattering*). Hal ini berarti struktur yang terjadi adalah campuran dari gelas  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dan presipitat kristalin AgI pada 300 K. Analisa dengan GSAS pada kristalin AgI murni menunjukkan komponen kristal terdiri dari 4% FCC dari fasa- $\gamma$  dan lainnya adalah fasa- $\beta$  berbentuk hexagonal (*wurtzite-type*) [13]. Fasa  $\beta$  stabil pada suhu ruang dengan tekanan rendah, tetapi biasanya *sample* terdiri dari sedikit campuran fasa- $\gamma$  [4]. Puncak Bragg tajam terjadi dari presipitat dan memiliki harga *d-spacing* sesuai dengan kristal AgI murni. Hal ini menunjukkan bahwa presipitat tersebut murni berasal dari AgI. Pada suhu 544 K pola difraksi menunjukkan fasa- $\alpha$  (BCC) baik pada kristalin AgI murni maupun pada presipitat AgI di dalam gelas  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$ .

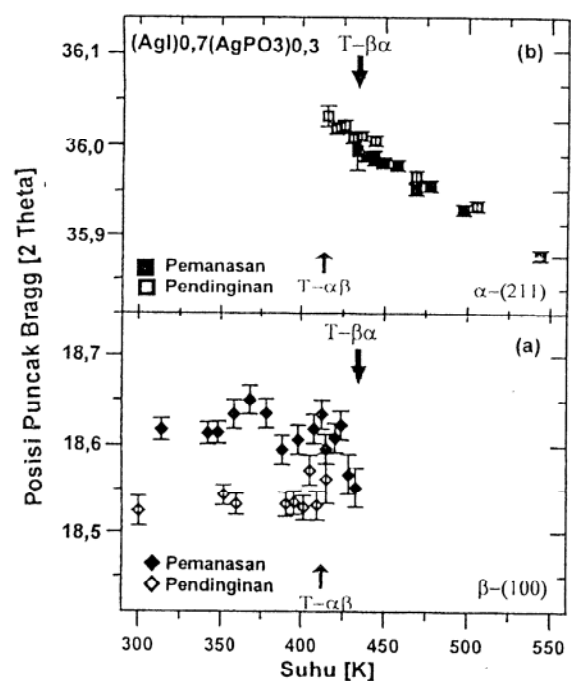
Untuk mengamati transisi fasa, dipilih variasi



Gambar 5. Variasi intensitas (a) puncak Bragg b-(1 0 0) dan (b) puncak Bragg a-(2 1 1) terhadap perubahan suhu, pada saat pemanasan dan pendinginan.

intensitas terhadap suhu dari salah satu puncak Bragg yang kuat pada fasa- $\beta$  (1 0 0) dan pada fasa- $\alpha$  (2 1 1). Gambar 4 dan 5 menunjukkan intensitas dan posisi puncak Bragg sebagai fungsi dari suhu. Pada suhu ruang, dimana fasanya  $\beta$ , puncak Bragg (1 0 0) pada saat pemanasan mengalami transisi ke fasa- $\alpha$  pada suhu 435 K (gambar 5a simbol wajik penuh). Pada waktu pendinginan, puncak (1 0 0) ini timbul kembali pada suhu 415 K (gambar 5a simbol wajik kosong). Di atas suhu transisi, yaitu pada fasa- $\alpha$ , terjadi pertumbuhan kristal dengan puncak Bragg (2 1 1) pada suhu 435 K saat pemanasan (gambar 5b simbol persegi penuh), dan pada saat pendinginan puncak tersebut menghilang pada suhu 415 K (gambar 5b simbol persegi kosong). Dapat disimpulkan disini bahwa kedua transisi fasa  $\beta \leftrightarrow \alpha$  terjadi pada suhu yang sama untuk suatu perlakuan, pemanasan atau pendinginan.

Gambar 6 menunjukkan posisi dari puncak Bragg  $\beta$ -(1 0 0) dan  $\alpha$ -(2 1 1). Pada awalnya, ketika posisi puncak Bragg  $\beta$ -(1 0 0) ada pada sudut hamburan  $2\theta \sim (18,62 \pm 0,15)^\circ$ , kemudian terjadi pergeseran posisi puncak ke arah sudut hamburan yang lebih kecil sekitar  $2\theta \sim (18,55 \pm 0,10)^\circ$ . Hal ini lebih disebabkan karena faktor ekspansi termal, dimana jarak antar atom membesar pada saat terjadi pemanasan, atau sebaliknya sudut hamburan menjadi lebih kecil. Pada saat pendinginan, letak dari puncak Bragg  $\beta$ -(1 0 0) tidak berubah, yaitu pada posisi  $2\theta \sim (18,52 \pm 0,15)^\circ$ . Pada suhu tinggi, posisi puncak Bragg  $\alpha$ -(2 1 1) adalah  $2\theta \sim (35,98 \pm 0,10)^\circ$  saat terjadi transisi fasa dari  $\beta \rightarrow \alpha$  pada suhu 435 K kemudian bergeser ke arah sudut hamburan yang lebih besar, mencapai  $2\theta \sim (35,85 \pm 0,10)^\circ$  pada suhu 544 K, demikian pula



Gambar 6. Variasi posisi (a) puncak Bragg b-(1 0 0) dan (b) puncak Bragg a-(2 1 1) terhadap perubahan suhu, pada saat pemanasan dan pendinginan.

sebaliknya pada saat pendinginan. Hal ini juga menunjukkan adanya ekspansi termal linear pada fasa-a pada suhu tinggi.

## KESIMPULAN

Pada makalah ini telah diuraikan bagaimana karakter struktur gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  yang merupakan campuran dari sebagian gelas dan sebagian presipitat dari kristalin AgI. Pada daerah sudut hamburan rendah atau pada harga momentum transfer  $Q \sim 0,7 \text{ \AA}^{-1}$  terdapat puncak tajam difraksi pertama (FSDP) yang berasal dari jangkauan orde menengah, karena adanya sisipan AgI yang membentuk *microcluster* di dalamnya. FSDP ini menunjukkan perubahan terhadap suhu, dimana terjadi kenaikan intensitas yang sangat tajam, menurun kembali, dan diikuti dengan terjadinya kristalisasi dari jaringan fosfat. Suhu lebur juga diperoleh pada 544 K, dimana seluruh puncak Bragg dari kristalisasi bagian gelas ini "melebur" kembali menjadi puncak lebar (*amorphous*) pada fasa cairan.

Pada bagian presipitat AgI, telah ditunjukkan adanya transisi dari fasa b $\rightarrow$ a saat pemanasan pada suhu 435 K, dan transisi fasa a $\rightarrow$ b pada suhu 415 K. Proses ini diamati melalui puncak Bragg (1 0 0) pada fasa b, dan puncak Bragg (2 1 1) pada fasa a. Analogi dengan proses ini, transisi fasa b $\rightarrow$ a terjadi pula pada kristalin murni AgI, pada saat pemanasan dan pendinginan, pada suhu berturut-turut 438 K dan 410 K untuk posisi puncak Bragg yang sama [13]. Hal ini menunjukkan bahwa presipitat yang terjadi, tidak lain berasal dari AgI. Adapun bergesernya posisi puncak Bragg ke arah sudut hamburan yang lebih kecil pada saat pemanasan, menunjukkan terjadinya ekspansi termal linear walaupun tidak terlalu signifikan.

Secara umum dari hasil percobaan pada gelas konduktor superionik  $(AgI)_{0,7}(AgPO_3)_{0,3}$  dengan hamburan neutron, memiliki banyak hal untuk dicermati. Kemudahan percobaan yang dilakukan secara *insitu*, memperkaya hal tersebut, karena pada saat bersamaan / simultan berbagai proses terjadi, yang menunjukkan berbagai sifat fisis, termal maupun struktur baik dari bagian gelas maupun bagian presipitat AgI. Hal ini dimungkinkan karena untuk setiap pola difraksi pada suhu tertentu, dapat diukur hanya dalam waktu dua jam untuk seluruh daerah sudut hamburan.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Prof. Dr. M.F. Collins, atas bimbingan selama penulis melaksanakan program postdoctoral di *Dept. of Physics McMaster University, Canada*. Dr Eric Svensson atas kesempatan melakukan eksperimen di *Chalk River Laboratory*. Drs. Saiful Yusuf M.T. dan Drs. Trihardi Priyanto M.T., P3IB Batan, atas bantuan persediaan cuplikan gelas. Kepala P3IB dan Kepala Balai Spektrometri, BATAN, atas

ijin melaksanakan program ini di Kanada. Penelitian ini dibiayai dengan anggaran RUT VI.1&2 (1998/2000) dan *National Science and Engineering Research Council (NSERC), Canada*.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. C.A. ANGELL, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **43** (1992) 693
- [2]. T. MINAMI, *Journal Non-Cryst. Solids* **95 & 96** (1987) 107
- [3]. M.D. INGRAM, *Phys. Chem. Glasses* **28** (1987) 215
- [4]. S.W. MARTIN, *J. Am. Ceram. Soc.* **74** (1991) 1767
- [5]. E. KARTINI, T. PRIYANTO, S. YUSUF, N. INDAYANINGSIH, and M.F. COLLINS, *Canadian Association of Physicist Congress, Waterloo, Canada, 16-17 June 1998*
- [6]. E. KARTINI, M.F. COLLINS, T. PRIYANTO, S. Yusuf, N. INDAYANINGSIH, E.C. SVENSSON, I. SWAINSON, and S.J. KENNEDY, *Gordon Research Conference on "Disorder in Materials", Colby Sawyer, New London, New Hampshire, USA, 19-24 July 98*
- [7]. S. YUSUF, E. KARTINI, T. PRIYANTO dan N. INDAYANINGSIH, *Prosiding Seminar Nasional Kimia Anorganik V, ISSN:1410-8313, Yogyakarta, 8-9 Maret (1999)*
- [8]. E. KARTINI, *Laporan Akhir RUT VI.1 (1998/1999)*
- [9]. E. KARTINI, M.F. COLLINS, T. PRIYANTO, S. YUSUF, I. SUMIRAT, E. PANJAITAN, N. INDAYANINGSIH, S.J. KENNEDY and E.C. SVENSSON, *Physics Journal of the Indonesian Physical Society*, **2**, 2 (1999) 16.
- [10]. E. KARTINI, *Laporan Akhir RUT VI.2 (1999/2000)*
- [11]. E. KARTINI, T. PRIYANTO, S. YUSUF, SETIAWAN, H. M. RAHARDJO, N. INDAYANINGSIH and S.J. KENNEDY, *Prosiding Pertemuan Ilmiah Sains Materi III (1998)* 218-221
- [12]. E. KARTINI, M.F. COLLINS, T. PRIYANTO, S. YUSUF, E.C. SVENSSON, S.J. KENNEDY, *Physical Review B* **61** (2000) 1036-1042
- [13]. E. KARTINI, M.F. COLLINS, E.C. SVENSSON, S.J. KENNEDY, *European Conference on Neutron Scattering 1999, Budapest, Hungary (1-4 September 1999)* and *Physica B* **276-278** (2000) 442-443
- [14]. A. HALLBRUCKER and G.P. JOHARI, *Phys. Chem. Glasses* **30** (1989) 211.
- [15]. J.D. WICKS, L. BORJESSON, G. BUSHNELL-WYE, W.S. HOWELLS and R.L. MCGREEVY, *Physica Scripta* **157** (1998) 127.
- [16]. M. NAKAYAMA, M. HANAYA, A. HATATE, M. OGUNI, *Journal of Non-Crystalline Solids*, **172-174** (1994) 1252.