

REGANGAN KISI DAN UKURAN BUTIR ELEKTROLIT PADAT KOMPOSIT ALKALI-ALUMINA

Yustinus Purwamargapratala dan Safei Purnama

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir, BATAN,
Puspipstek, Serpong, Tangerang, Banten 15314

Email : pratala.yustinus@yahoo.com

ABSTRAK

REGANGAN KISI DAN UKURAN BUTIR ELEKTROLIT PADAT KOMPOSIT ALKALI-ALUMINA.

Penelitian regangan kisi dan ukuran butir elektrolit padat alkali-alumina telah dilakukan. Komposit alkali-alumina yang diteliti adalah alumina dengan penambahan bahan alkali Ba, Ca, Na, dan Li ke bahan alumina dan alumina tanpa penambahan alkali. Bahan aluminium hidroksida dan garam alkali nitrat dicampur dengan perbandingan mol 1:1 dalam larutan air, dilakukan evaporasi dan pirolisis pada temperatur 300 °C selama 1 jam. Hasil pirolisis dicampur alumina dengan perbandingan berat 1:1, dikompaksi, dan dipanaskan 600 °C selama 3 jam. Karakterisasi hasil sintesa digunakan dengan XRD (*X-Ray Diffractometer*) pada 2θ antara 20°-80° dengan target CuK α . Hasil analisa menunjukkan bahwa terjadi penurunan intensitas dan pergeseran puncak difraksi setelah penambahan alkali, sudut difraksi semakin membesar. Penambahan alkali Ca, Ba, Na, dan Li menjadikan penurunan regangan kisi menjadi 0,0028; 0,0016; 0,0015; dan 0,0007 dari regangan kisi alumina 0,004. Ukuran butir alumina-alkali pada Ba-alumina, Na-alumina, dan Li-alumina mengecil menjadi 75,814; 69,7948; dan 48,4003 nm, sedangkan pada Ca-alumina menjadi lebih besar yaitu 183,7855 nm, ukuran butir alumina sebelum penambahan alkali adalah 138,3441 nm. Hasil penelitian ini dapat memberikan informasi dalam pemilihan komposit alkali-alumina dengan konduktifitas ionik terbesar dan metodenya dapat digunakan pada bahan bakar nuklir.

Kata kunci : Regangan kisi, ukuran kristalit, elektrolit padat, alkali-alumina

ABSTRACT

LATTICE STRAIN AND GRAIN SIZE SOLID COMPOSITE ELECTROLITE OF ALKALI-ALUMINA.

*Research of lattice strain and cristalite size of solid electrolyte of alumina-alkali has been done. Alkali-alumina composites studied are alumina with the addition of alkaline materials Ba, Ca, Na, and Li into the material of alumina and alumina without the addition of alkali. Material hidroksida aluminum nitrate alkali and salt mixed with mol comparison 1:1 in water solution was do evaporated and pirolisis at temperatures 300 °C for 1 hour. Pirolisis results was mixed alumina comparison mol with 1:1, compacted, and heated 600 °C for 3 hours. Characterization results used with XRD (*X-Ray Diffractometer*). Results of analysis show at $2\theta = 20^{\circ}$ - 80° to the CuK α target that the intensity decrease and shift in diffraction peak after the addition of alkali, the diffraction angles increase. The addition of alkali Ca, Ba, Na, and Li was decreased in lattice strain be 0.0028, 0.0016, 0.0015, and 0.0007 from 0.004 alumina lattice strain. Alumina grain size the alkali-alumina in Ba-alumina, Na-alumina, and Li-alumina over a 75.814, 69.7948 and 48.4003 nm, while the Ca-alumina outgrow the*

183.7855 nm, the grains size of alumina before the addition of alkali is 138.3441 nm. The results of this research can provide information in the selection of alkali-alumina composite with the largest ionic conductivity and the method can be applied to nuclear fuel.

Keywords: Lattice strain, the size kristalit, solid electrolyte, alkali-alumina

PENDAHULUAN

Beta-alumina merupakan konduktor ionik natrium yang baik, biasanya digunakan sebagai elektrolit padat pada baterai natrium sulfur. Komposit alkali-alumina dengan alkali Ba, Ca, Li, dan Na telah diteliti sebelumnya dan dapat digunakan sebagai elektrolit padat. Komposit alkali-alumina merupakan suatu konduktor padat. Elektrolit padat ini digunakan pada sistem sel baterai padat^[1]. Penelitian konduktivitas proton konduktor pada temperatur rendah telah dilakukan terhadap garam oksida asam sulfat, asam fosfat dan yang berhubungan dengan keramik^[2-4]. Telah pula dilakukan pembuatan keramik beta alumina (β - Al_2O_3) sebagai bahan elektrolit padat pada baterai kering^[5]. Bahan baku yang digunakan adalah NaCO_3 , $\text{Mg}(\text{OH})_2\text{CO}_3$ dan $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ dengan cara campuran padat. Suhu sintering divariasi 1400–1600 °C selama 2 jam. Untuk fasa $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ hanya muncul pada suhu 1400 °C tanpa aditif MgO. Ukuran butir yang diperoleh berkisar antara 2–4 μm dan dimensi pori sekitar 26 μm , dimana bentuk, ukuran dan dimensi pori sangat tergantung pada kondisi sintering dan jumlah aditif MgO. Nilai ekspansi termal pada kondisi sintering terbaik (1550–1600 °C) sekitar $(8\text{--}11)\times 10^{-6}$ °C⁻¹. Nilai konduktivitas yang optimum adalah $1,25\text{--}9,34$ (ohm cm)⁻¹ yang diperoleh pada suhu sintering 1550 °C, ditahan 2 jam pada sampel dengan aditif 4,8 % berat MgO^[6].

Garam nitrat dan garam oksida lainnya mempunyai konduktivitas ionik tinggi yaitu antara 10^{-2} sampai 10^{-1} S/cm pada 400 °C. Garam oksida asam dan bahan keramik mempunyai keunggulan mekanik dan kimia pada suhu operasi rendah. Bahan ini banyak digunakan di masa mendatang untuk baterai padat^[7].

Konduksi ionik di dalam suatu bahan padat terjadi akibat adanya ketidakteraturan pada bahan tersebut. Getaran thermal pada bahan menyebabkan ion memperoleh energi untuk melakukan perpindahan dari satu tempat ke tempat lain di dalam suatu kristal sehingga terjadi kekosongan, hal ini menyebabkan cacat kristal. Tidak ada kristal yang sempurna, setiap kristal mengandung cacat (defect). Cacat kristal ini besar kemungkinannya terjadi selama proses pertumbuhan kristal, proses pemurnian atau proses perlakuan (treatment), dan bahkan sering kali cacat kristal sengaja diciptakan untuk menghasilkan sifat-sifat tertentu. Cacat kristal dapat dibedakan menjadi cacat titik, cacat garis, cacat bidang dan cacat ruang.

Cacat kristal dapat menyebabkan regangan kisi dan akan mempengaruhi nilai konduktivitas ionik dalam bahan tersebut. Kecacatan tersebut dapat memperluas bidang transformasi ionik sehingga konduktivitas ioniknya meningkat.

Keramik modern mempunyai keunikan atau sifat yang menonjol yaitu tahan terhadap temperatur tinggi, sifat mekanis yang sangat baik, sifat elektrik yang istimewa, tahan terhadap bahan kimiawi. Bahan bakar nuklir yang berbasis Uranium Oksida (UO_2) sudah sangat luas digunakan. Bahan tersebut merupakan keramik modern dan mempunyai kemampuan yang unik untuk menjaga sifat-sifat yang unggul setelah penggunaan yang lama sebagai bahan bakar pada reaktor nuklir.

Tujuan pembuatan bahan bakar antara lain untuk memperoleh satuan bahan bakar sekecil mungkin dan berupa partikel berlapis. Partikel ini tidak saja harus dapat mengungkung produk fisi tetapi berfungsi pula sebagai moderator dengan adanya grafit, sehingga

perbedaan suhu dalam bahan bakar kecil dan bahan bakar tidak mudah mengalami keretakan. Pengukuran regangan kisi dan diameter bahan bakar juga perlu dilakukan agar diperoleh diperoleh karakter bahan bakar yang optimal.

Penentuan diameter partikel dalam bahan bakar reaktor nuklir oleh R. Didiek Hernady, dan kawan-kawan^[8]. Bahan bakar reaktor berupa campuran oksida (U-Th)O₂ berbentuk bola dengan diameter 0,5 mm.

Diameter kernel U₃O₈ ditentukan dengan metode optis menggunakan mikroskop optik. Hasil penelitian menunjukkan bahwa diameter kernel U₃O₈ semakin kecil seiring dengan meningkatnya suhu kalsinasi.

Dalam penelitian ini dilakukan penentuan regangan kisi dan ukuran butir alkali-alumina dengan menggunakan data hasil uji difraksi sinar-X. Penentuan regangan kisi dan ukuran butir komposit elektrolit padat alkali alumina dengan varian alkali Ba, Ca, Na, dan Li, sedangkan parameter proses sintesa dibuat sama. Metode ini dapat diterapkan juga dalam penentuan regangan kisi dan diameter butir bahan bakar reaktor.

TATA KERJA

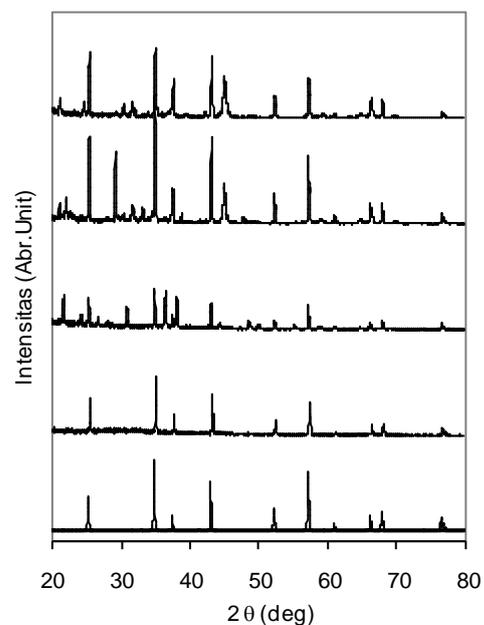
Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah aluminium hidroksida, lithium nitrat, natrium nitrat, barium nitrat, kalsium nitrat. Sedangkan peralatan yang dipakai neraca semi analitis, pengaduk dan pemanas magnet, mesin pres, tungku sinter, peralatan gelas, dan XRD.

Bahan aluminium hidroksida dan garam alkali dicampur dengan perbandingan mol 1 : 1 dalam larutan air. Campuran ini diaduk hingga homogen, kemudian dilakukan evaporasi dan pirolisis pada temperatur 300^o C selama 1 jam. Hasil pirolisis dicampur alumina dengan perbandingan mol 1:1, kemudian dikompaksi, dan dipanaskan 600^o C selama 3 jam. Hasil sintesa dikarakterisasi

menggunakan XRD (*X-Ray Diffractometer*) pada $2\theta=20^{\circ}$ - 80° .

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil sintesa yang terdiri dari Alumina-Ba, Alumina-Ca, Alumina-Na, dan Alumina-Li berupa padatan yang dikompaksi, demikian pula alumina tanpa penambahan alkali yang digunakan sebagai pembanding. Sampel dikarakterisasi menggunakan XRD (*X-Ray Diffractometer*) pada $2\theta = 20^{\circ} - 80^{\circ}$ dengan target Cu K α dengan difraktogram seperti diperlihatkan pada Gambar 5. Dari difraktogram Gambar 5a. terlihat bahwa puncak-puncak alumina adalah pada $2\theta = 25,225^{\circ}$; $34,803^{\circ}$; $43,008^{\circ}$; dan $57,154^{\circ}$.



Gambar 5. Pola Difraksi Sinar-X sampel dari
a. Alumina, b. Alumina-Ba c.
Alumina-Ca d. Alumina-Na
e. Alumina-Li

Puncak-puncak tersebut juga teramati pada sampel-sampel alumina-Ba, alumina-Ca, alumina-Na, dan alumina-Li. Namun demikian sudut difraksinya tidak tepat sama dengan puncak-puncak alumina sebelum penambahan

alkali, terjadi pergeseran sesuai dengan alkali yang ditambahkan.

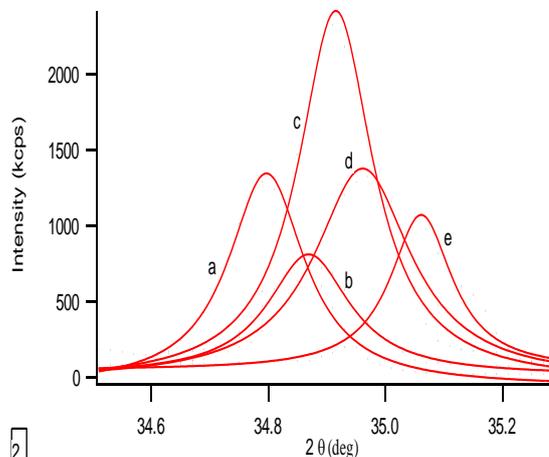
Demikian pula intensitas puncak-puncak tersebut mengalami perubahan dibanding intensitas alumina. Intensitas pada alumina-Ba dan alumina-Ca lebih rendah, sedangkan alumina-Na dan alumina-Li lebih tinggi, seperti diperlihatkan pada Tabel 1

Tabel 1. Hasil analisis data XRD sampel Alumina, Alumina-Ba, Alumina Ca, Alumina-Na, Alumina-Li

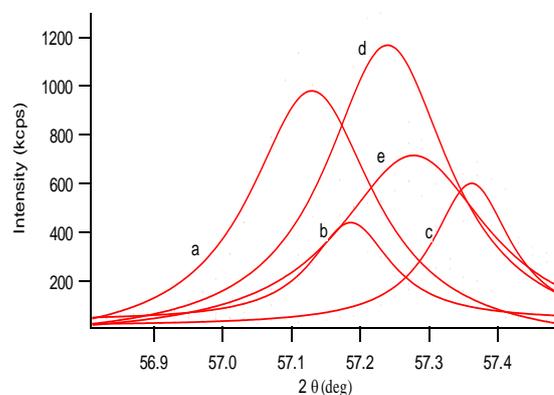
Sampel	2θ (°)	Intensitas	FWHM
Alumina	25.225	599.37	0.16412
	34.803	1242.2	0.15371
	43.008	821.11	0.17865
	57.154	864.11	0.22715
Alumina+Ba	25.512	581.7	0.11899
	34.871	697.03	0.15036
	43.267	617.59	0.18289
	57.38	497.12	0.18031
Alumina+Ca	25.301	437.72	0.1534
	34.927	2187.5	0.16005
	43.075	416.83	0.16589
	57.196	332.88	0.18166
Alumina+Na	25.354	1587.1	0.16061
	34.971	1246.5	0.20699
	43.117	1482.1	0.17889
	57.255	1050.4	0.22486
Alumina+Li	25.391	1184.2	0.19389
	35.085	891.16	0.16375
	43.158	1095.6	0.20963
	57.28	666.84	0.25183

Ba dan Ca merupakan unsur golongan II sedangkan Na dan Li merupakan unsur golongan I. Penurunan intensitas ini dapat menunjukkan bahwa alumina lebih mudah mengikat alkali golongan I dari pada terhadap alkali golongan II.

Pengamatan terhadap puncak-puncak alumina menunjukkan adanya nilai pergeseran 2θ yang berbeda untuk masing-masing sampel, hal ini diperlihatkan pada Gambar 6.



Gambar 6.a. Hasil fitting puncak alumina pada 2θ sekitar 35° sampel dari a. Alumina b. Alumina-Ba c. Alumina-Ca d. Alumina-Na e. Alumina-Li



Gambar 6.b. Hasil fitting puncak alumina pada 2θ sekitar 57.2° sampel dari a. Alumina, b. Alumina-Ba c. Alumina-Ca d. Alumina-Na e. Alumina-Li

Dari rumusan $\lambda = 2 d \sin \theta$ dan fenomena yang terjadi pada Gambar 6a dan 6b, menunjukkan bahwa peningkatan nilai θ disebabkan oleh adanya penurunan nilai d , demikian pula penurunan nilai θ disebabkan

peningkatan nilai d. Hal ini terjadi karena nilai θ adalah tetap.

Atom-atom golongan I mempunyai nomor atom lebih kecil dari pada nomor atom golongan II sehingga ukuran atomnya pun lebih kecil, sedangkan reaktifitas lebih besar. Hal ini menyebabkan alkali golongan I lebih mudah membentuk ikatan terhadap alumina.

Regangan kisi (η) dan ukuran butir (D) dihitung dari data tabel 1 dengan membuat grafik hubungan $\beta \cos \theta$ dan $\sin \theta$ berdasarkan persamaan Bragg yang diperlihatkan pada Gambar 7 :

$$\beta(\cos \theta)\lambda^2 = 2\eta(\sin \theta)\lambda^{-1} + 0,9 D^{-1}$$

dimana :

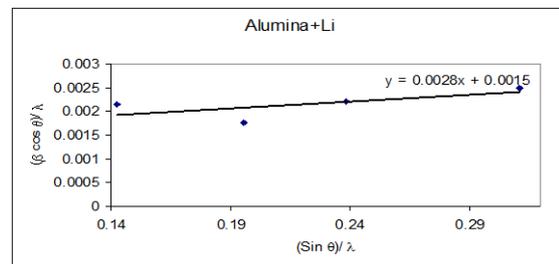
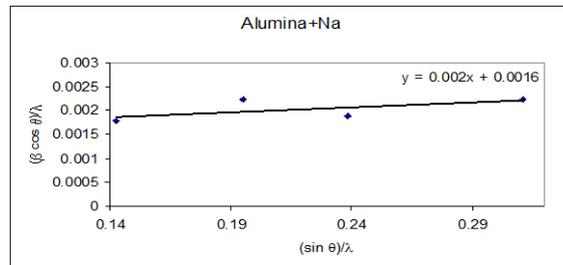
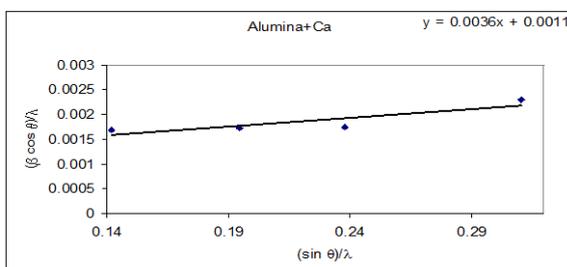
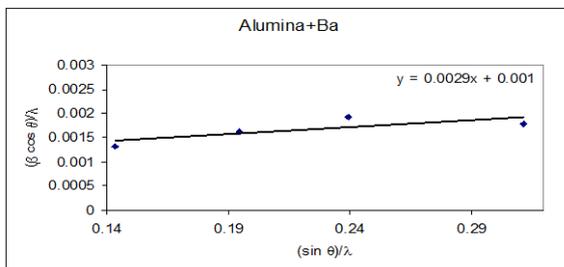
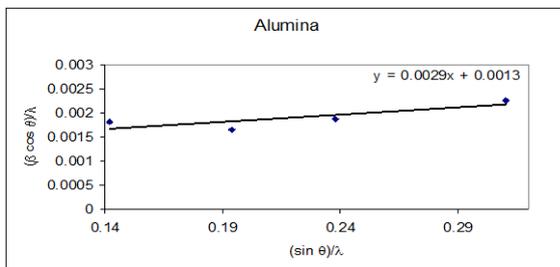
β : lebar puncak difraksi pada FWHM

θ : sudut braga

λ : panjang gelombang sinar-X

η : regangan kisi

D : ukuran butir



Gambar 7. Hubungan $\beta(\cos \theta)\lambda^2$ dan $(\sin \theta)\lambda^{-1}$ sampel dari a.Alumina, b.Alumina-Ba c.Alumina-Ca d.Alumina-Na e.Alumina-Li

Dari Gambar 7 dapat diketahui nilai regangan kisi yaitu suatu nilai yang dihitung berdasarkan nilai gradien grafik tersebut dan ukuran kristalit sampel yang dihitung berdasarkan nilai intersepnya.

Nilai regangan kisi suatu senyawaan dapat menginterpretasikan seberapa besar keregangan atom-atom penyusun senyawaan tersebut. sedangkan ukuran kristalit menginterpretasikan seberapa besar butir/kristalinitnya.

Sampel	Regangan Kisi	Ukuran Kristalit (nm)
Alumina	0.0040	138.3441
Alumina+Ba	0.0028	183.7855
Alumina+Ca	0.0016	75.81409
Alumina+Na	0.0015	69.79475
Alumina+Li	0.0007	48.40031

Tabel 2. Hasil perhitungan regangan kisi dan ukuran kristalit dari a.Alumina, b.Alumina-Ba, c.Alumina-Ca d.Alumina-Na e.Alumina-Li

Tabel 2 menunjukkan bahwa regangan kisi alumina tanpa ditambah alkali adalah 0,0040 dan akan mengalami penurunan dengan penambahan alkali. Penurunan nilai regangan kisi terbesar adalah pada alumina-Li, ini berarti nilai regangan kisi alumina-Li adalah terkecil. Hal ini berarti rongga antar atom alumina dan Li paling besar sehingga peluang terjadinya transformasi ion semakin besar pula. Transformasi ion dipengaruhi oleh regangan kisi, dimana pada regangan kisi yang rendah berarti jarak antar bidang kristal lebih besar sehingga mempermudah transformasi ion yang melaluinya.

Ukuran kristalit alumina tanpa alkali adalah 138,3441 nm akan meningkat pada penambahan alkali Ba sedangkan pada penambahan Ca, Na, dan Li akan menyebabkan ukuran kristalit mengecil.

Pada sistem periodik usur terlihat bahwa diameter atom Ba, Ca, Na, dan Li berurutan semakin mengecil. Hal ini menyebabkan ikatan antara Li dan alumina paling kuat dari pada yang lain, akibatnya ukuran kristalit Li-alumina paling kecil diantara yang lain.

Penambahan alkali Li pada alumina menyebabkan ukuran kristalit paling kecil yaitu 48,40031nm. Hal ini mendukung hasil

penelitian sebelumnya yaitu nilai konduktifitas alumina-Li adalah tertinggi daripada alumina-alkali lainnya ^[1].

SIMPULAN

Penambahan alkali Ca, Ba, Na, dan Li ke dalam alumina menyebabkan penurunan regangan kisi dari alumina. Ukuran kristalit alumina-alkali pada alumina-Ba lebih besar sedangkan pada alumina-Ca, alumina-Na, dan alumina-Li lebih kecil dari pada alumina.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih yang sebesar-besarnya kami sampaikan kepada Bapak Drs. Patrisius Purwanto, M.Sc atas kerja sama dan diskusi mengenai topik makalah ini, juga kepada Bapak Yosef Sarwanto, S.ST yang banak membantu dalam karakterisasi dengan metode XRD.

DAFTAR PUSTAKA

1. YUSTINUS PURWAMARGAPRA-TALA, S.PURNAMA, dan P.PUR-WANTO, Pengaruh Alkali Dalam Pembentukan Elektrolit Padat Berbasis Alumina Alkali, *Journal Sains Materi*, ISSN 1411-1098, Edisi Khusus Desember 2008, halaman 136-139.
2. PB.HEED, B.ZHU, E.MELLANDER, dan A.LUNDEN, *Solid State Ionics*, 46(1991), 121.
3. E.MELLANDER dan B.ZHU, *Acta Chem. Scand*, 45 (1991) 981.
4. B.ZHU dan E.MELLANDER, *in High Temperature Electrochemical Behaviour of Fast Ion and Mixed Conductors*, eds, F.W.Poulsen, JJ.Bentzen, T.Jacobson, E.Skou and MJL.Østergård (Risø national laboratory, Roskilde, 1993) page.495.
5. SAFEI PURNAMA, *Synthesis Solid Electrolyte Of Beta-Alumina*, Prosiding Pertemuan Ilmiah Ilmu Pengetahuan dan

- Teknologi Bahan 1999, Serpong 19-20 Oktober 1999.
6. RAMLAN, Pengaruh MgO Dan Suhu Sintering Terhadap Mikrostruktur Dan Sifat Fisis Keramik Beta Alumina (β - Al_2O_3), Skripsi Jurusan Fisika Universitas Indonesia, 30 Agustus 2001.
 7. P.PURWANTO dan S.PURNAMA, Pengaruh Konsentrasi AgI Terhadap Sifat Termal dan Konduktifitas Elektrolit Padat $(\text{AgI})_x(\beta\text{-Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ ($x=0,3$ dan $x=0,5$). Jurnal Sains Materi Indonesia Vol 9, No.2, Februari 2008 halaman 105-109.
 8. R.DIDIEK HERHADY, R.SUKARSONO, dan BUSRON MASDUKI, Pengaruh Suhu Kalsinasi Dalam Tungku Jenis *Fluidized BED* Terhadap Sifat Fisis Kernel U3O8, Journal Kimia Indonesia, Vol 1,(21)2006, halama 1-4.