

Pengaruh Penambahan SiO₂ Hasil Ekstraksi Sekam Padi Pada Sintesis Natrium Superionik Konduktor (NASICON) dan Sifat Konduktivitas Ionik Baterai Elektrolit Padat

Hariyati Purwaningsih[✉], Syifa' Errahmah², Yohan Ervianto², Haniffudin Nurdiansyah¹, Yenni Rahmawati³, dan Diah Susanti¹

¹Departemen Teknik Material, FTI, Institut Teknologi Sepuluh Nopember

²Graduate Student Departemen Teknik Material, FTI, Institut Teknologi Sepuluh Nopember

³Master Student Departemen Teknik Material, FTI, Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Info Artikel

ABSTRAK

Sejarah Artikel:

Diterima:

28 November 2018

Disetujui:

29 Desember 2018

Dipublikasikan:

29 Desember 2018

Keywords:

NASICON, SiO₂,
sekam padi, sol-gel,
konduktivitas ionik

Penelitian ini bertujuan untuk menganalisa pengaruh penambahan SiO₂ hasil ekstraksi dari sekam padi pada pembentukan fasa NASICON dan konduktivitas ionik pada baterai elektrolit padat. Proses pembentukan NASICON menggunakan metode sol-gel dari NaOH, SiO₂ dari sekam padi, H₃PO₄ dan ZrOCl₂.8H₂O. SiO₂ untuk pembentukan NASICON diekstrak dari sekam padi dengan metode *acid-leaching*. Hasil pengujian XRD menunjukkan bahwa silika hasil ekstraksi berbentuk amorf. Hasil SEM pada silika memperlihatkan bahwa morfologi silika berpori. Hasil FTIR ekstraksi silika menunjukkan bahwa adanya ikatan Si-O-Si pada sampel. Hasil XRD NASICON menunjukkan bahwa struktur sebelum pemanasan kedua adalah monoklinik, sedangkan setelah melalui proses kompaksi dan pemanasan kembali berstruktur rhombohedral. Hasil LCR menunjukkan bahwa Nyquist Plot dari ketiga komposisi bersifat semikonduktor dengan konduktivitas tertinggi dimiliki oleh NASICON dengan komposisi $x = 2$. Penambahan fraksi mol SiO₂ pada NASICON tidak menghasilkan perubahan struktur kristal, namun sintering hingga 1000°C menghasilkan transformasi struktur kristal monoklinik ke rhombohedral. Selain itu, nilai konduktivitas semakin tinggi pada penambahan nilai fraksi mol (x) namun akan menurun seiring dengan kenaikan fraksi mol ≥ 2 .

ABSTRACT

This research aims to analyze the effect of the addition of SiO₂-rice husk extracted on the phase formation of NASICON and to analyze ionic conductivity on solid electrolyte batteries. NASICON synthesized by sol-gel method uses NaOH, SiO₂ from rice husk, H₃PO₄ and ZrOCl₂.8H₂O. First, SiO₂ was extracted from rice husk by acid-leaching method, continued with sol-gel method for NASICON synthesized various silica. X-ray diffraction showed that silica extracted was amorphous phase. Scanning electron microscope (SEM) showed that silica had porous morphology. According to the FTIR data, there was identified Si-O-Si bond in the extracted-silica sample. There was crystal structure transformation monoclinic to rhombohedral in NASICON after heat treatment. Nyquist Plot showed that NASICON had semiconducting behaviour, with the highest ionic conductivity of NASICON at composition $x = 2$.

© 2018 Universitas Negeri Semarang

[✉] Alamat korespondensi:

Departemen Teknik Material, FTI, Institut Teknologi Sepuluh Nopember
E-mail: hariyati@mat-eng.its.ac.id

p-ISSN 2088-1509

PENDAHULUAN

Baterai dikenal sebagai sumber listrik yang fleksibel (tidak perlu dihubungkan ke sumbernya), sehingga dapat diaplikasikan dalam peralatan elektronik seperti ponsel. Baterai memiliki tiga komponen utama, yakni anoda, katoda, dan elektrolit. Elektrolit memiliki sifat sebagai penghantar (konduktor) ion yang baik dikenal dengan dua macam, cair dan padat. Sebelum tahun 1960-an, material konduktor ionik padat yang sering dikembangkan seperti α -AgI, Ca^{2+} , atau Y^{3+} disubstitusi dengan ZrO_2 . Pada perkembangannya, konduktor Na^+ ditemukan dalam bentuk β -alumina ($\text{Na}_2\text{O} \cdot 11\text{Al}_2\text{O}_3$). Struktur β -alumina memungkinkan ion Na^+ untuk bergerak secara dua dimensi. Pada tahun 1975, Goodenough dkk. memperkenalkan NASICON sebagai struktur konduktor ion yang memungkinkan ion Na^+ bergerak secara tiga dimensi (Linden, 2002; Noguchi dkk., 2013).

Tingginya nilai konduktivitas ionik dari NASICON ini memberikan efek terhadap konsentrasi ion *charge carrier* yang tinggi dan mobilitas yang tinggi. Konsentrasi dan mobilitas *charge carriers* yang tinggi dari solid elektrolit NASICON ini disebabkan oleh stuktur kristalnya. Umumnya, NASICON memiliki tiga kerangka dimensi untuk migrasi Na^+ . Ion-ion yang bergerak ini umumnya adalah kation dengan ukuran kecil, sehingga beberapa tipe konduktor disebut sebagai Konduktor Kation (Lunghammer dkk., 2018).

Ada dua metode yang bisa digunakan dalam sintesis NASICON, yaitu metode padat-padat (*solid-state sintering*) dan metode sol-gel. Pada metode padat-padat, penelitian tentang sintesis NASICON yang pernah dilakukan yaitu menggunakan campuran Na_2CO_3 , ZrSiO_4 , Na_2HPO_4 , dan H_3PO_4 (Naqash dkk., 2016; Ruan dkk., 2018; Noguchi dkk., 2013). Pada metode sol-gel, penelitian yang pernah dilakukan yaitu menggunakan campuran $\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$, $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$, $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, dan asam hidroksi [asam tartarat, asam sitrat, asam malat, dan asam laktat (Yadav and Bhatnagar, 2012).

Material NASICON mempunyai struktur kristal rhombohedral, monlinik, triklinik, orthombik, dan *corundum-like* disebabkan perbedaan komposisi dan temperatur sintering (Guin, Tietz dan Guillon, 2016). Konduktivitas optimum dari NASICON berada pada komposisi $1.8 \leq x \leq 2.2$ dengan struktur monoklinik (Hou dkk., 2018). Beberapa peneliti melakukan studi pengaruh perbedaan komposisi terhadap struktur dan sifat elektrik. NASICON $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{P}_{3-x}\text{Si}_x\text{O}_{12}$ ($0 \leq x \leq 3$) dimana x menyatakan mol penambahan Si. Hasil riset tersebut menunjukkan bahwa pada komposisi $x = 2.05$ diperoleh konduktivitas NASICON yang paling tinggi. Penelitian lain menyebutkan komposisi NASICON dengan variasi $0.4 \leq x \leq 2.8$ dengan hasil pada komposisi $x = 2$ memperoleh konduktivitas terbesar (Anantharamulu dkk., 2011).

Penambahan Si pada NASICON ($0 \leq x \leq 1.8$) akan meningkatkan nilai konduktivitas, namun seiring bertambahnya x hingga maksimal ($2.2 \leq x \leq 3$) konduktivitas cenderung menurun. Mengingat bahwa material NASICON $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{P}_{3-x}\text{Si}_x\text{O}_{12}$ (NZPS) merupakan *solid-electrolyte* dengan konduksi ionik yang baik, maka NZPS merupakan salah satu kandidat *solid-state sodium batteries* (SSBs) (Ruan dkk., 2018). Untuk itu diperlukan investigasi lebih lanjut mengenai pengaruh penambahan mol SiO_2 yang diekstraksi dari sekam padi, dengan fraksi mol pada rentang $0 \leq x \leq 1.8$; $1.8 \leq x \leq 2.2$; dan $2.2 \leq x \leq 3$. Penelitian ini bertujuan menganalisis bagaimana pengaruh penambahan fraksi mol SiO_2 ($x = 1.5$; 2; 2.5) pada pembentukan fasa $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{Si}_x\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$ serta menganalisis pengaruh penambahan SiO_2 pada sifat konduksi ionik untuk aplikasi baterai elektrolit padat.

METODE

Penelitian ini dilakukan dalam dua tahapan yaitu, pertama ekstraksi silika dari sekam padi, dan kedua proses sintesis NASICON.

Proses Ekstraksi Silika dari Sekam Padi

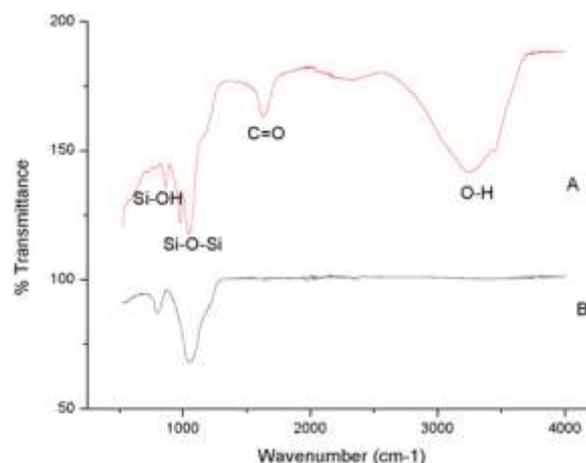
Proses ekstraksi silika (SiO_2) dilakukan dengan cara menambahkan HCl 2 M sebanyak 100 ml pada SiO_2 kemudian dipanaskan pada suhu 900°C selama dua jam. Hasil ekstraksi itu dicuci hingga mencapai $\text{pH} = 7$ dan dipanaskan dalam *muffle furnace* pada suhu 600°C selama 4 jam. Setelah itu, hasil proses pemanasan direaksikan dengan NaOH 2 M sebanyak 100 ml menggunakan *stirring* 900 rpm selama 2 jam. Kemudian sampel didinginkan dan disaring endapannya menggunakan kertas saring. Larutan hasil saringan dititrasi dengan larutan H_3PO_4 2 M sedikit demi sedikit hingga pH mencapai 7. Setelah itu, sampel dibiarkan selama 30 menit untuk proses *aging*, kemudian dilanjutkan dengan *centrifuge* pada kecepatan putar 4000 rpm selama 5 menit dan mencuci endapan yang terbentuk menggunakan akuades. Endapan tersebut kemudian dilakukan pengeringan (*drying*) dengan suhu 100°C selama dua jam.

Proses Sintesis NASICON

Sintesis NASICON diproses menggunakan NaOH, larutan H_3PO_4 , dan $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$. SiO_2 dihitung perbandingan molarnya dalam larutan dengan tiga variasi mol SiO_2 yakni 1,5 ; 2 ; 2,5 ($x = 1,5; 2; 2,5$). Sintesis NASICON dilakukan dengan melarutkan SiO_2 hasil ekstraksi sekam padi sesuai perbandingan dengan NaOH yang telah dilarutkan dalam akuades. Begitu pula dengan $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ dan H_3PO_4 dilarutkan dalam akuades. Sintesis dilakukan dengan metode sol gel dilanjutkan dengan *sintering* pada 1000°C selama tiga jam. Untuk mengetahui struktur mikro, struktur kristal dan sifat elektronik (konduksi ionik) maka dilakukan pengujian difraksi sinar-x (XRD), mikroskop elektron (SEM) dan LCR meter.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sampel untuk pengujian FTIR berupa serbuk dari sekam yang telah diperlakukan (*leaching*) menggunakan HCl kemudian dibakar dengan temperatur 600°C . Hasil uji FTIR serbuk silika hasil ekstraksi ditunjukkan pada Gambar 1.

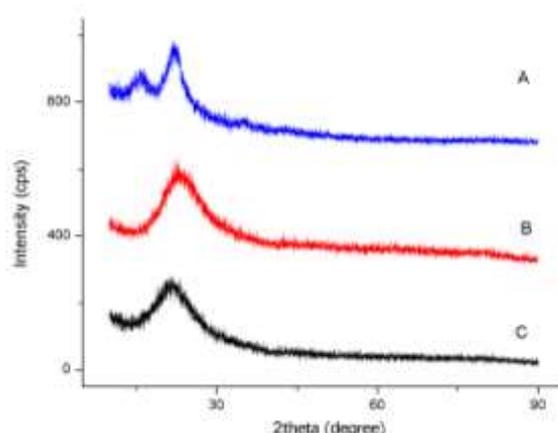


Gambar 1. Hasil uji FTIR (A) silika hasil ekstraksi dan (B) sekam padi

Gambar 1 menunjukkan spektra FTIR untuk silika hasil ekstraksi (Gambar 1A) dan spektra FTIR untuk sekam padi (Gambar 1.B). Pengujian FTIR digunakan untuk karakterisasi dan identifikasi gugus fungsi senyawa yang diuji. Hasil pengujian FTIR menunjukkan bahwa kedua spektra pada Gambar 1 memperlihatkan adanya persamaan puncak pada sekam maupun hasil

ekstraksi pada range bilangan gelombang 1050–1115 cm^{-1} yang merupakan vibrasi dari Si-O-Si (Patil, Dongre dan Meshram, 2014). Keberadaan gugus fungsi Si-O-Si menunjukkan adanya kandungan silika pada sekam. Silika hasil ekstraksi akan digunakan untuk proses sintesis NASICON. Sedangkan pada spektra FTIR silika hasil ekstraksi terdapat puncak pada range bilangan gelombang 3000-4000 cm^{-1} yang menunjukkan adanya vibrasi ikatan rangkap C=O. Adanya ikatan rangkap C=O pada silika menunjukkan adanya karbon hasil pembakaran yang masih terikat pada silika hasil ekstraksi. Selain itu teridentifikasi juga gugus fungsi O-H yang menunjukkan masih adanya senyawa H_2O yang terjebak sebagai air kristal, sehingga perlu perlakuan panas untuk memurnikan silika (Purwaningsih dkk., 2018).

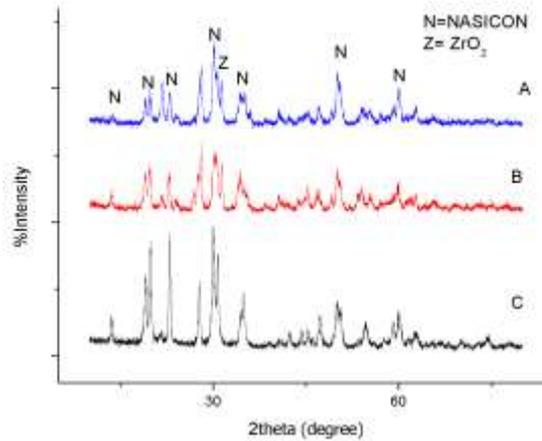
Hasil pengujian difraksi sinar-x pada sampel sekam padi ditunjukkan pada Gambar 2, dimana sampel sekam padi *as-received* ditunjukkan pada Gambar 2.A, sekam yang telah diekstraksi ditunjukkan pada Gambar 2.B, sedangkan sekam setelah *leaching* ditunjukkan pada Gambar 2.C. Hasil pengujian difraksi sinar-x pada sekam padi menunjukkan kurva yang melebar (*broadening*). Profil kurva lebar menunjukkan kecenderungan terbentuk fasa amorfus (Athinarayanan dkk., 2014). Difraktogram XRD sekam padi terdapat puncak difraksi di $2\theta = 16.5153^\circ$, 22.1727° , dan 34.6140° adalah puncak difraksi untuk selulosa sesuai dengan ICDD # 00-003-0226. Pada puncak 22.1727° membentuk puncak yang lancip menunjukkan selulosa pada sekam padi memiliki struktur kristalin. Puncak 16.5153° dan 34.6140° membentuk puncak yang melebar yang menandakan selulosa memiliki struktur amorf. Sedangkan pada $2\theta = 22.1727^\circ$ pada sekam padi dan 22.6103° pada sekam padi yang di *leaching* menunjukan puncak difraksi dari silika sesuai dengan ICDD # 00-001-0424. Puncak difraksi selulosa dan silika pada $2\theta = 22^\circ$ saling berhimpitan. Hal ini disebabkan silika organik dalam sekam padi berikatan dengan selulosa. Silika organik didalam sekam padi memiliki ikatan yang kompleks dan terlihat berikatan dengan karbohidrat (Maleki, Durães dan Portugal, 2014).



Gambar 2. Difraktogram untuk sampel (A) Sekam padi sebelum dibakar (B) SiO_2 hasil ekstraksi (C) sekam setelah leaching HCl dan kalsinasi 600°C

Hasil pengujian difraksi sinar-x untuk sekam setelah *leaching treatment* ditunjukkan pada Gambar 2.C. Puncak difraksi pada sampel sekam padi yang di leaching mengalami perubahan pada $2\theta = 22.6103^\circ$. Puncak difraksi selulosa menghilang setelah perlakuan kimia. Perlakuan kimia yang dilakukan pada serat alami dapat mempengaruhi kristalinitas selulosa. Sebagai contoh, asam encer tidak berpengaruh pada domain kristal, tetapi menghancurkan wilayah amorf serat. Sedangkan puncak difraksi pada $2\theta = 26^\circ$ menunjukkan kurva yang melebar untuk kesesuaian dengan puncak difraksi silika. Posisi sudut difraksi tersebut mengarah pada pembentukan fasa SiO_2 yang bersesuaian dengan ICDD # 01-089-8951. Sedangkan Gambar 2 (B) merupakan grafik hasil

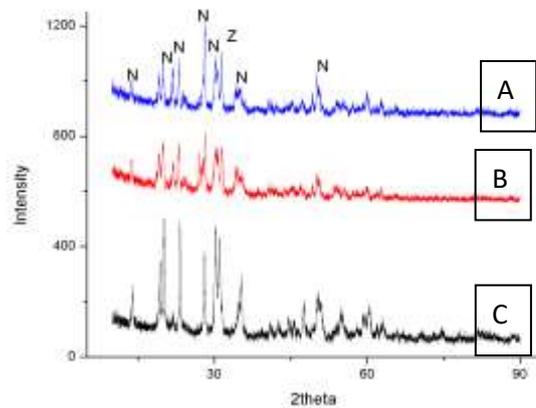
Pengujian XRD silika hasil ekstraksi, profil kurva XRD menunjukkan kesesuaian dengan pola difraksi setelah *leaching treatment*. Hasil ekstraksi sekam padi telah menghasilkan silica.



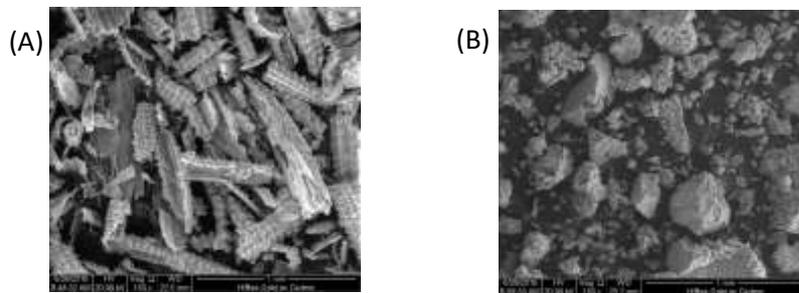
Gambar 3. Difraktogram serbuk NASICON setelah sintering temperatur 1000°C untuk $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{Si}_x\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$ penambahan SiO_2 untuk (A) $x = 2.5$ (B) $x = 2$ (C) $x = 1.5$

Hasil pengujian difraksi sinar-x terhadap sintesis NASICON variabel penambahan silika ditunjukkan pada Gambar 3. Variabel penambahan silika $x = 1.5 - 2.5$ menunjukkan pola difraksi yang hampir sama. Identifikasi fasa mengindikasikan adanya fasa NASICON ($\text{Na}_{3.12}\text{Zr}_2\text{Si}_{2.12}\text{P}_{0.88}\text{O}_{12}$) bersesuaian dengan ICDD #01-084-1317 pada $2\text{-theta} = 19,850$. Berdasarkan data kristalografi, struktur kristal NASICON adalah monoklinik. Hasil analisis kualitatif juga menunjukkan masih adanya fasa zirconia ZrO_2 dengan ICDD #01-083-0942, hal ini juga bersesuaian dengan riset sebelumnya yang menggunakan bahan Na_2CO_3 , ZrO_2 , SiO_2 and $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ menghasilkan NASICON-type structure (PDF#35-0412) dengan masih menyisakan ZrO_2 (Ruan dkk., 2018). Teridentifikasi fasa ZrO_2 pada penambahan mol silika ($X = 1.5 : 2 : 2.5$) menunjukkan bahwa pada proses sintesis senyawa $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ belum bereaksi sempurna dalam pembentukan NASICON, sehingga pada proses *sintering* 1000°C masih terdapat senyawa ZrO_2 . Sedangkan sintesis NASICON dengan bahan *tetraethoxysilane* ($\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$, TEOS), *zirconium n-butaxide* ($\text{Zr}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$), tri-n-butylphosphate ($\text{PO}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$) dan *sodium ethoxide* (NaOC_2H_5) dengan metode sol-gel dilanjutkan dengan sintering 750°C selama 1 jam telah menghasilkan NASICON- $\text{Na}_3\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{P}_2\text{O}_{12}$ ICDD#35-0412 (Noguchi dkk., 2013).

Hasil difraktogram dan SEM serbuk NASICON yang disintering kembali pada 1000°C secara berturut-turut ditunjukkan pada Gambar 4 dan Gambar 5. Hasil difraktogram mengindikasikan adanya NASICON ($\text{Na}_2\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{P}_2\text{O}_{12}$) fasa rhombohedral dengan $2\text{-theta} = 20,110$ bersesuaian dengan ICDD #01-079-1804. Perlakuan panas sintering menyebabkan transformasi struktur kristal NASICON dari monoklinik menjadi rhombohedral. Proses sintering belum mampu menghasilkan NASICON secara keseluruhan, masih menyisakan fasa zirconia. Hal ini bersesuaian dengan penelitian sebelumnya yang melakukan sintesis NASICON dengan bahan TEOS sebagai *precursor* silika dan dilanjutkan dengan proses *sintering* hingga 1250°C. NASICON yang dihasilkan mempunyai fasa rhombohedral dengan masih menyisakan zirconia (Naqash, 2018).



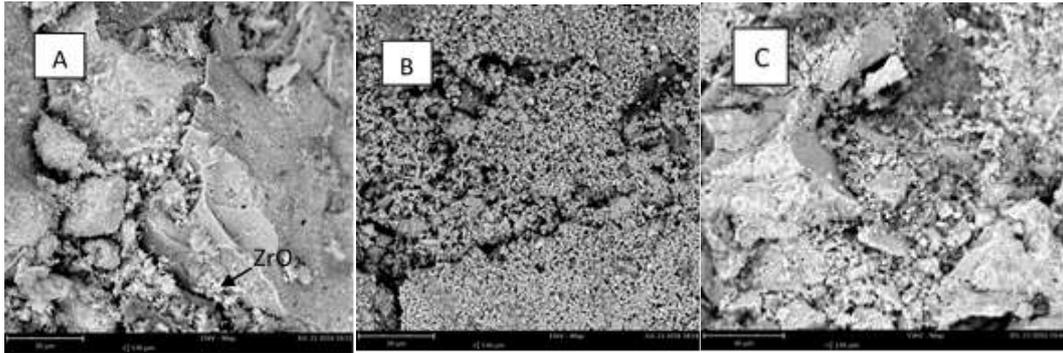
Gambar 4. Difraktogram serbuk NASICON setelah sinting ulang pada temperatur 1000°C untuk $\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{Si}_x\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$ penambahan SiO_2 untuk (A) $x=2,5$ (B) $x=2$ (C) $x=1,5$



Gambar 5. Hasil Pengujian SEM pada (A) sekam padi yang telah dibakar (RHA) dan (B) SiO_2 hasil ekstraksi

Pada Gambar 5 menunjukkan hasil pengujian SEM pada sekam padi yang telah dibakar dan silika hasil ekstraksi. Pada Gambar 5 (A), sekam padi yang telah dibakar memiliki permukaan yang tidak rata namun berpola seperti bonggol jagung. Sekam padi yang dibakar masih memiliki bentuk partikel memanjang sekitar 1 mm. Gambar 5 (B) menunjukkan pengujian SEM silika hasil ekstraksi sekam padi. Partikel mempunyai bentuk yang tidak beraturan dengan permukaan yang berlubang-lubang (porous). Selain itu, ukuran partikel hasil ekstraksi tersebut tidak seragam dan menggumpal. Penelitian sejenis menyebutkan morfologi RHA dan silika yang diekstraksi menunjukkan struktur mikro yang menyerupai Gambar 5 (Mupa dkk., 2015).

Gambar 6 menunjukkan mikrografi SEM sampel NASICON bentuk pellet setelah sinting ulang 1000 °C. Gambar 6.A merupakan bentuk morfologi dari NASICON dengan penambahan SiO_2 ($x = 1.5$). Struktur mikro memperlihatkan permukaan yang tidak homogen. Terdapat butir yang besar dan teridentifikasi adanya ZrO_2 ditunjukkan sebagai partikel kecil dengan warna lebih terang terdistribusi local di permukaan. Hal ini bersesuaian dengan hasil pengujian difraksi sinar-x pada Gambar 3.



Gambar 6. Hasil Pengujian SEM pada NASICON (A) X=1,5 (B) X=2 (C) X=2,5

Gambar 6.B merupakan bentuk morfologi dari NASICON dengan penambahan SiO_2 $x = 2$. Dari gambar tersebut, terlihat bahwa bentuk permukaan sampel lebih homogen. Struktur mikro NASICON untuk $x = 2$ bersesuaian dengan studi sebelumnya, dimana sintering pada 1000°C menghasilkan struktur mikro butirnya lebih homogen namun berpori (Ruan dkk., 2017). Selain itu, ZrO_2 juga terdapat pada sampel ini. Gambar 6.C merupakan bentuk mikrografi NASICON dengan komposisi $x = 2.5$. Struktur mikro untuk NASICON pada $x = 2.5$ hampir sama seperti pada penambahan silika $x = 1.5$. Partikel menjadi lebih besar, dan morfologinya tertutupi oleh ZrO_2 namun lebih sedikit. Selain itu, pelet tidak terkompaksi sempurna sehingga menghasilkan permukaan yang tidak rata.

Untuk mengetahui karakteristik konduksi ionik maka perlu dilakukan pengujian LCR meter pada NASICON yang telah dikompaksi dan disinter 1000°C . Sampel uji dilapisi pasta perak konduktif sebagai elektroda. Hasil dari LCR meter berupa data yang berisi nilai frekuensi, resistansi (R), dan impedansi (Z). Dari data tersebut akan diperoleh nilai konduktivitas menggunakan persamaan 1 (Barsoum, 2003).

$$\sigma = \frac{t}{L \cdot Z} \quad (1)$$

dimana, σ adalah konduktivitas ionik (S/cm); t adalah tebal spesimen (cm); L adalah luas permukaan (cm^2); dan Z adalah impedansi total (Ω).

Data hasil pengujian menunjukkan nilai konduktivitas setiap komposisi penambahan silika ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Nilai konduktivitas NASICON dengan beda komposisi

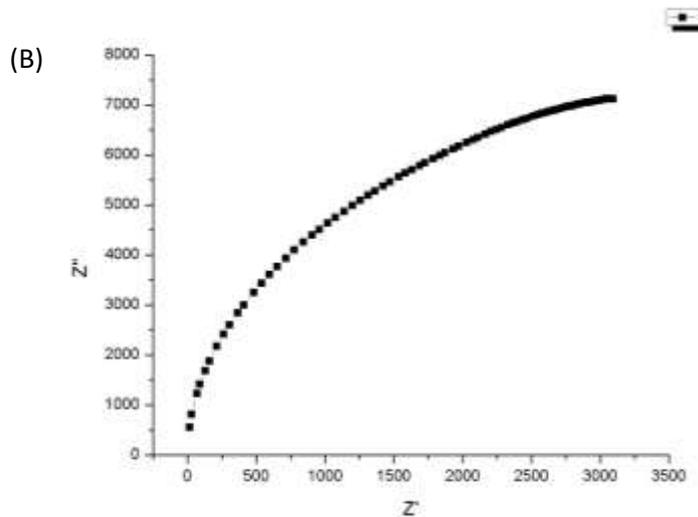
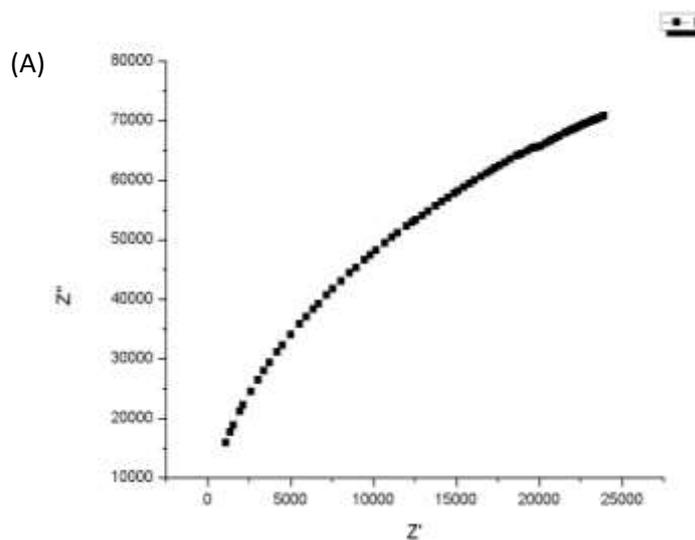
Komposisi NASICON	Konduktivitas (S/cm)	Impedans (Ω)
$\text{Na}_{2,5}\text{Si}_{1,5}\text{Zr}_2\text{P}_{1,5}\text{O}_{12}$	$4,60 \times 10^{-7}$	$1,16 \times 10^5$
$\text{Na}_3\text{Si}_2\text{Zr}_2\text{PO}_{12}$	$7,61 \times 10^{-6}$	$6,88 \times 10^4$
$\text{Na}_{3,5}\text{Si}_{2,5}\text{Zr}_2\text{P}_{0,5}\text{O}_{12}$	$7,84 \times 10^{-7}$	$8,1 \times 10^4$

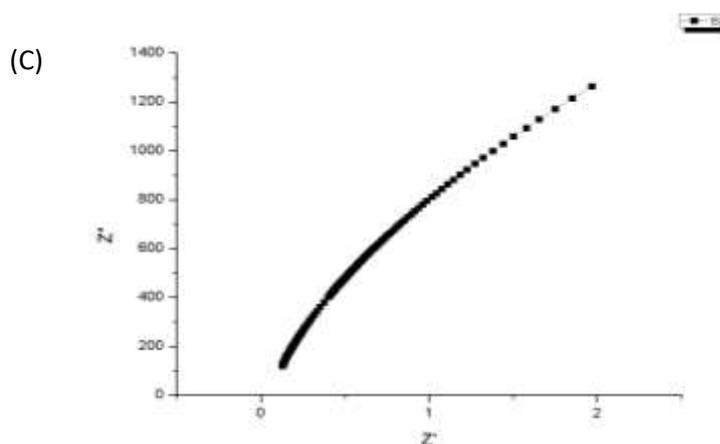
Dari Tabel 1 diketahui bahwa konduktivitas NASICON tertinggi diperoleh NASICON dengan komposisi $x = 2$. Hasil tersebut masih relatif lebih rendah dibanding penelitian sejenis yang menggunakan silika dari TEOS (Ruan dkk., 2018; Naqash dkk., 2016). Gambar 7 menunjukkan Plot Nyquist yang diperoleh setelah melakukan perhitungan menggunakan persamaan 2 dan persamaan 3.

$$Z' = \frac{R}{1+(2\pi fCR)^2} \tag{2}$$

$$Z'' = \frac{2\pi fCR^2}{1+(2\pi fCR)^2} \tag{3}$$

dimana, f adalah frekuensi (Hz), C adalah kapasitansi (F), dan R adalah resistansi (Ω)





Gambar 7. Plot Nyquist NASICON (A) $x=1,5$ (B) $x=2$ (C) $x=2,5$

NASICON dengan konduktivitas seperti pada Tabel 1 belum bisa direkomendasikan untuk perangkat baterai lithium. Konduktivitas ionik yang diperlukan untuk salah satu perangkat dalam baterai lithium tersebut adalah lebih dari 10^{-4} S/cm pada temperatur -400°C sampai 900°C . Namun, hasil Nyquist plot dari NASICON pada penelitian ini bersifat semikonduktor yang masih memungkinkan untuk menjadi salah satu komponen baterai. NASICON pada temperatur lebih dari 300°C memiliki performa sama dengan natrium β -alumina. Dengan demikian, NASICON memiliki potensi untuk menjadi komponen baterai bukan pada temperatur kamar, melainkan pada temperatur 300°C (Guin dan Tietz, 2015).

SIMPULAN

Ekstraksi Silika (SiO_2) berhasil dilakukan dengan menggunakan metode *acid-leaching* dengan bahan dasar sekam padi. Silika hasil ekstraksi mempunyai struktur kristal amorfus dan morfologinya berpori. Sintesis Natrium *Super Ionic Conductor* ($\text{Na}_{1+x}\text{Zr}_2\text{Si}_x\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$) dengan $x=1.5$; 2; dan 2.5 berhasil dilakukan dengan menggunakan metode sol-gel dilanjutkan *sintering* 1000°C . Hasil sintesis NASICON pada ketiga komposisi memiliki struktur monoklinik, sedangkan setelah proses kompaksi dan pemanasan 1000°C struktur kristalnya berubah menjadi rhombohedral. Penggunaan silika dari sekam padi sebagai salah bahan baku sintesis NASICON dengan tiga komposisi tersebut menghasilkan material NASICON bersifat semikonduktor, namun NASICON dengan komposisi $x = 2$ memiliki konduktivitas ion paling tinggi sebesar 7.61×10^{-6} S/cm. Nilai konduktivitas ionik NASICON semakin tinggi pada penambahan nilai fraksi mol (x) silika dari $x = 1.5 - 2$, namun konduktivitas ionik menurun seiring dengan kenaikan fraksi mol silika $x \geq 2$.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Hibah Penelitian Dana Departemen Tahun Anggaran 2017 Nomor: 1196/PKS/ITS/2017.

REFERENSI

- Anantharamulu, N., Rao, K. K., Rambabu, G., Kumar, B. V., Radha, V., Vithal, M. (2011). A wide-ranging review on Nasicon type materials. *Journal of Materials Science*, 46(9), 2821–2837.
- Athinarayanan, J., Periasamy, V.S., Alhazmi, M., Alatiah, K. A., dan Alshatwi, A. A. (2014). Synthesis of biogenic silica nanoparticles from rice husks for biomedical applications. *Ceramics International*, 41(1), 275–281.
- Barsoum, M. W. (2003). *Fundamental of Ceramic*. USA: IOP Publishing.

- Guin, M. dan Tietz, F. (2015). Survey of the transport properties of sodium superionic conductor materials for use in sodium batteries. *Journal of Power Sources*, 273, 1056–1064.
- Guin, M., Tietz, F., dan Guillon, O. (2016). New promising NASICON material as solid electrolyte for sodium-ion batteries: Correlation between composition, crystal structure and ionic conductivity of $\text{Na}_{3+x}\text{Sc}_2\text{Si}_x\text{P}_{3-x}\text{O}_{12}$. *Solid State Ionics*, 293, 18–26.
- Hou, W., Guo, X., Shen, X., Amine, K., Yu, H., dan Lu, J. (2018). Nano Energy Solid electrolytes and interfaces in all-solid-state sodium batteries: Progress and perspective', *Nano Energy*, 52, 279–291.
- Linden, D. (2002). Book Review: Handbook of Batteries and Fuel Cell. *Journal of Power Sources*, 17, 379-384.
- Lunghammer, Ma, S. Q., Rettenwanden, D., Hanzu, I., Tietz, F., dan Wilkening, H.M.R. (2018). Bulk and grain-boundary ionic conductivity in sodium. *Chemical Physics Letters*, 701, 147–150.
- Maleki, H., Durães, L., dan Portugal, A. (2014). An overview on silica aerogels synthesis and different mechanical reinforcing strategies. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 385, 55–74.
- Mupa, M., Hungwe, C. B., Witzleben, S., Mahamadi, C., dan Muchanyereyi, N. (2015). Extraction of silica gel from Sorghum bicolor (L.) moench bagasse ash. *African Journal of Pure and Applied Chemistry*, 9(2), 12–17.
- Naqash, S., Ma, Q., Tietz, F., dan Guillon, O. (2016). $\text{Na}_3\text{Zr}_2(\text{SiO}_4)_2(\text{PO}_4)$ prepared by a solution-assisted solid state reaction. *Solid State Ionics*, 302, 83-91.
- Naqash, S., Sebold, D., Tietz, F., dan Guillon, O. (2018). Microstructure – conductivity relationship of $\text{Na}_3\text{Zr}_2(\text{SiO}_4)_2(\text{PO}_4)$ ceramics. *Journal American Ceramics Society*, 1-14.
- Noguchi, Y., Kobayashi, E., Platnisha, L. S., Okada, S., dan Yamaki, J. (2013). Electrochimica Acta Fabrication and performances of all solid-state symmetric sodium battery based on NASICON-related compounds. *Electrochimica Acta.*, 101, 59–65.
- Patil, R. C., Dongre, R., dan Meshram, J. (2014). Preparation of Silica Powder from Rice Husk Preparation of Silica Powder from Rice Husk. *Journal of Applied Chemistry*, 26-29.
- Purwaningsih, H., Pratiwi, V. M., Purwana, S.A.B., Nurdiansyah, H., Rahmawati, Y., dan Susanti, D. (2018). Fabrication of mesoporous silica nanoparticles by sol gel method followed various hydrothermal temperature. *AIP Conference Proceedings*, 1945.
- Ruan, Y., Song, S., Liu, J., Liu, P., Cheng, B., Song, X., dan Battaglia, V. (2017). Improved structural stability and ionic conductivity of $\text{Na}_3\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{PO}_{12}$ solid electrolyte by rare earth metal substitutions. *Ceramics International*, 43(10), 7810–7815.
- Ruan, Y., Guo, F., Liu, J., Song, S., Jiang, N., dan Cheng, B. (2018). Optimization of $\text{Na}_3\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{PO}_{12}$ ceramic electrolyte and interface for high performance solid-state sodium battery. *Ceramics International*, 45(2), 1770-1776.
- Yadav, P. dan Bhatnagar, M. C. (2012). Structural studies of NASICON material of different compositions by sol – gel method. *Ceramics International*, 38(2), 1731–1735.