

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Metode Penelitian

Metode yang digunakan dalam penelitian kali ini adalah eksperimen. Pada penelitian ini dilakukan pembuatan substrat NiO-CSZ dengan teknik *pressing* dan penumbuhan lapisan CSZ di atas substrat NiO-CSZ dengan metode *electrophoretic deposition* (EPD).

3.2 Lokasi Penelitian

Penelitian ini dilaksanakan pada waktu dan tempat :

Tempat : Laboratorium Fisika Bahan Bidang Fisika, Pusat
Teknologi Nuklir Bahan dan Radiometri Badan Tenaga
Nuklir Nasional (PTNBR-BATAN)

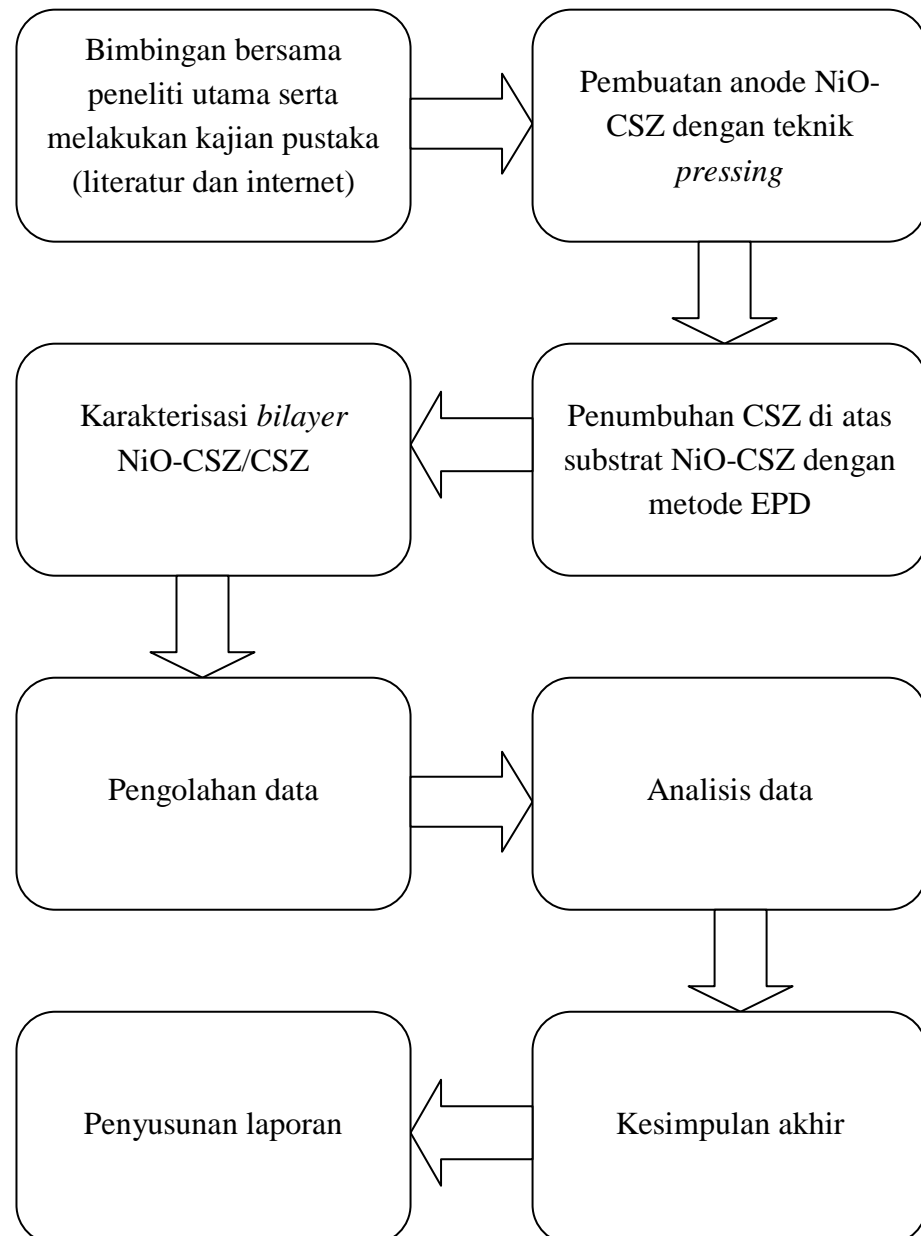
Alamat : Jl.Tamansari No.71, Bandung

3.3 Waktu penelitian

Penelitian dilaksanakan pada bulan Agustus 2013 – Januari 2014

3.4 Desain Penelitian

Sistematika penyusunan skripsi ini secara umum dapat dilihat seperti pada gambar 3.1 berikut



Gambar 3.1. Sistematika desain penelitian

3.5 Alat dan Bahan

3.5.1 Alat yang digunakan

Alat yang digunakan dalam penelitian ini antara lain :

1. Mesin *Press*
2. Neraca digital
3. Cawan
4. Mortar
5. Spatula
6. Mesin penggerus
7. Beaker
8. 2 buah botol kaca
9. 1 set alat EPD (rangkaiian penyearah arus dan rangkaiian elektroda)
10. Power supply
11. 2 buah multimeter
12. Capit
13. Kabel
14. Stopwatch
15. *Tissue*
16. 1 set alat XRD
17. Mikroskop optik Nikon Measurecope MM 22 dilengkapi alat pengukur Nikon SC-112
18. Mikroskop optik MEIJI TECHNO JAPAN dilengkapi dengan kamera Canon DS126371 DC 7,4 V.
19. Penggaris
20. Tungku sinter
21. 1 set LCR meter
22. 1 set alat Ultrasonik

3.5.2 Bahan yang digunakan

Vidi Moorene, 2014

PEMBUATAN BILAYER ANODE (NiO-CSZ) - ELEKTROLIT CSZ DENGAN METODE ELECTROPHORETIC DEPOSITION

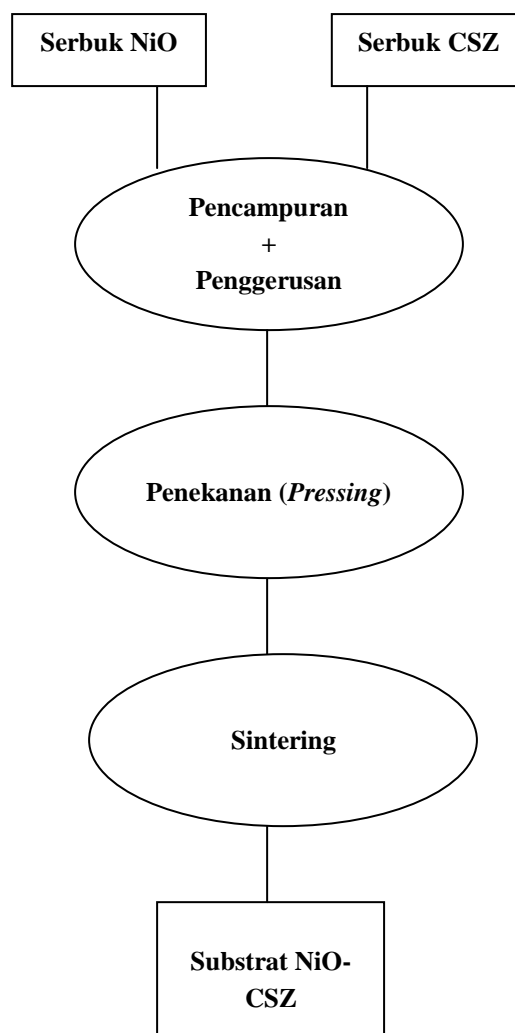
Universitas Pendidikan Indonesia | repository.upi.edu | perpustakaan.upi.edu

Bahan yang digunakan pada penelitian ini antara lain :

1. 7 gram serbuk NiO lokal
2. 5 gram serbuk CSZ lokal
3. 200 mL Alkohol
4. Serbuk PVB
5. Pasta perak
6. Gas Hidrogen 7%

3.6 Alur Pembuatan Anode NiO-CSZ

Berikut alur pembuatan substrat *anode* NiO-CSZ dengan menggunakan teknik *pressing*.



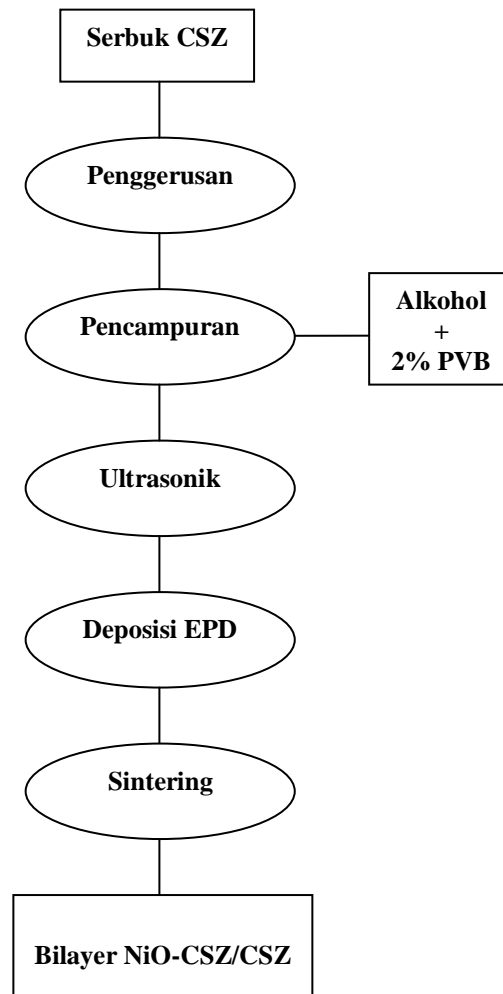
Gambar 3.2. Alur pembuatan anode NiO-CSZ

Berdasarkan gambar 3.2 di atas, alur pembuatan anode NiO-CSZ dapat dijelaskan melalui eksperimen yang telah dilakukan sebagai berikut :

- 3.6.1 Disiapkan serbuk NiO dan serbuk CSZ masing-masing dengan perbandingan % berat sebesar 50% : 50% dengan total massa 10 gram sehingga masing-masing serbuk NiO dan CSZ sebesar 5 gram dan 5 gram. Penimbangan dilakukan menggunakan neraca digital.
- 3.6.2 Dicampurkan kedua serbuk NiO dan CSZ kemudian menggerusnya menggunakan penggerus manual selama kurang lebih 2 jam agar dihasilkan serbuk NiO-CSZ yang halus dan memperoleh ukuran butir yang kecil serta campuran yang homogen.
- 3.6.3 Dilakukan pengepresan pada campuran NiO-CSZ pada tekanan 90 Kg/cm². Sebelum di *press*, campuran dibagi menjadi beberapa bagian dengan massa campuran masing-masing sebesar 0,6 gram. Pengepresan dilakukan menggunakan alat *press* bertujuan untuk memperoleh pelet NiO-CSZ yang padat dan keperluan sintering.
- 3.6.4 Dilakukan penyinteran pelet NiO-CSZ pada suhu 1250°C selama 2 jam. Sintering dilakukan untuk memperbesar butir serta memperkecil batas butir sehingga ikatan antar atom kuat.
- 3.6.5 Setelah semua tahap di atas telah dilakukan maka diperoleh substrat NiO-CSZ sebagai tempat melapisi CSZ serta komponen anode pada SOFC.

3.7 Alur Deposisi Lapisan CSZ di atas Substrat NiO-CSZ dengan Metode *Electrophoretic Deposition* (EPD)

Alur penumbuhan/deposisi CSZ dari suspensi CSZ di atas substrat NiO-CSZ dengan metode EPD dapat dilihat berdasarkan gambar 3.3.



Gambar 3.3. Alur penumbuhan CSZ di atas substrat NiO-CSZ

Berdasarkan gambar 3.3 di atas, alur pembuatan anode NiO-CSZ dapat dijelaskan melalui eksperimen yang telah dilakukan sebagai berikut :

- 3.7.1 Disiapkan serbuk CSZ sebanyak 2 gram yang ditimbang dengan menggunakan neraca digital.
- 3.7.2 Digerus serbuk CSZ tersebut dengan mesin penggerus selama kurang lebih 2 jam. Penggerusan dilakukan agar menghasilkan serbuk CSZ yang halus dan memperoleh ukuran butir yang kecil.

- 3.7.3 Dicampurkan serbuk CSZ ke dalam alkohol dengan perbandingan 2 : 200 sehingga masing-masing 2 gram dan 200 mL kemudian ditambahkan 2% PVB (0,04 gr). Penambahan PVB dilakukan sebagai dispersan. Aduk sampai serbuk CSZ dan PVB larut dalam alkohol sehingga dihasilkan suspensi CSZ yang rata. Kemudian suspensi dimasukkan kedalam 2 buah botol.
- 3.7.4 Dilakukan proses ultrasonik pada suspensi CSZ. Suspensi CSZ di ultrasonik selama kurang lebih 30 menit. Proses ultrasonik dilakukan bertujuan untuk menghancurkan butiran-butiran partikel yang menggumpal sehingga diperoleh ukuran butir partikel yang merata dan tidak menggumpal lagi.
- 3.7.5 Disiapkan set alat EPD. Letakkan substrat NiO-CSZ pada salah satu elektroda. Sebelum diletakkan, terlebih dahulu substrat NiO-CSZ dilapisi karbon diseluruh sisi agar substrat bersifat konduktif. Masukkan suspensi CSZ ke dalam beaker dan letakkan rangkaian elektroda ke dalam suspensi kemudian hubungkan kedua elektroda ke rangkaian penyearah DC. Aliri arus dan tegangan yang konstan pada rangkaian. Lakukan dengan waktu deposisi yang berbeda masing-masing 10 menit, 20 menit, dan 30 menit dengan arus dan tegangan yang sama. Pada deposisi ini diambil arus dan tegangan optimal yang relatif sama besar yakni 3,1 mA dan 3,5 V.
- 3.7.6 Dilakukan penyinteran lapisan CSZ di atas substrat NiO-CSZ pada suhu 1250°C selama 2 jam. Penyinteran dilakukan bertujuan agar lapisan CSZ berikatan dengan lapisan NiO-CSZ sehingga terbentuk *bilayer* NiO-CSZ/CSZ serta memperbesar butir dan memperkecil batas butir sehingga dihasilkan ikatan antar atom yang kuat pada lapisan CSZ.
- 3.7.7 Setelah semua tahap di atas dilakukan, maka akan dihasilkan *bilayer* NiO-CSZ/CSZ.

3.8 Karakterisasi Lapisan CSZ

3.8.1 Sifat Kristal Lapisan CSZ

Sifat kristal yang di cari meliputi struktur kristal, orientasi bidang serta nilai parameter kisi. Struktur kristal dan parameter kisi dapat diperoleh berdasarkan prinsip difraksi sinar-X dengan menggunakan alat *X-Ray Diffractometer* (XRD). Analisis difraksi sinar-X didasarkan melalui aturan atau hukum bragg

$$\lambda = 2 \cdot d \cdot \sin \theta \quad (3.8)$$

Dimana λ merupakan panjang gelombang sinar-X, d merupakan jarak antar bidang pendifraksi, dan $\sin \theta$ merupakan sudut difraksi. Jarak antar bidang pendifraksi (d) dapat ditentukan dengan persamaan

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2} \quad (3.8a)$$

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4 \sin^2 \theta}{\lambda^2} \quad (3.8b)$$

$$\sin^2 \theta = \left(\frac{\lambda^2}{4a^2} \right) (h^2 + k^2 + l^2) \quad (3.8c)$$

Dimana $h, k, \text{ dan } l$ adalah indeks miller yang menyatakan orientasi bidang dan a merupakan parameter kisi kristal. Jika struktur kristal berbentuk kubik (SC, BCC, dan FCC), maka penentuan kisi bravais dapat digunakan aturan seleksi dari nilai $h^2+k^2+l^2$ yaitu :

1. Dapat digunakan bilangan-bilangan aturan seleksi untuk masing-masing jenis struktur kubik berikut:
 - SC : 1,2,3,4,5,6,8,9,10,11,12,13,14,16,...
 - BCC : 2,4,6,8,10,12,14,16,...
 - FCC : 3,4,8,11,12,16,19,20,24,...
2. Dari hubungan $\sin^2 \theta = (\lambda^2/4a^2) \cdot (h^2+k^2+l^2)$ diperoleh $\sin^2 \theta / A = (h^2+k^2+l^2)$ dimana $A = (\lambda^2/4a^2)$, maka bagi nilai $\sin^2 \theta$ dengan nilai $(h^2+k^2+l^2)$ untuk SC (mulai dari 1,2,3,dst), BCC (mulai dari 2,4,6,dst), dan FCC (mulai dari 3,4,8,dst).

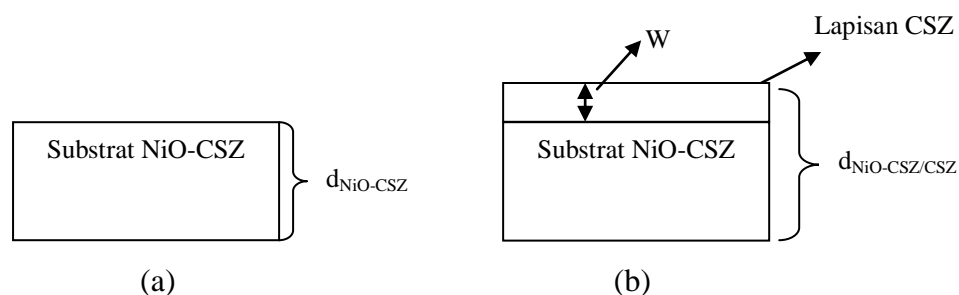
3. Dari hasil pembagian tersebut, tentukan bilangan terkecil yang paling sering muncul dan bilangan tersebut adalah nilai A. Kemudian tentukan nilai $\sin^2\theta/A$ sehingga akan diperoleh harga $(h^2+k^2+l^2)$. Dari harga $h^2+k^2+l^2$ dapat diperoleh struktur kristal serta orientasi bidang.

Data yang diperoleh dari karakterisasi XRD berupa sudut 2θ untuk setiap puncak dengan intensitas tertentu. Nilai parameter kisi dapat diperoleh dari persamaan sebelumnya $A = (\lambda^2/4a^2)$ dengan A merupakan bilangan terkecil yang paling sering muncul, λ merupakan panjang gelombang Cu (1,54060 Angstrom), dan a merupakan nilai parameter kisi.

3.8.2 Ketebalan Lapisan CSZ

Pada penelitian ini, dilakukan karakterisasi ketebalan lapisan CSZ menggunakan mikroskop optik Nikon Measurecope MM 22 yang dilengkapi dengan Nikon SC-112 sebagai alat pengukur ketebalan sampel. Alat pengukur ketebalan tersebut berskala milimeter (mm) dengan skala terkecil sebesar 0,001 mm. Alat pengukur memiliki batas pengukuran dari 0 hingga 51,745 mm.

Dengan bantuan mikroskop optik, maka lapisan elektrolit CSZ masing-masing sampel dapat di lihat perbedaan ketebalannya sehingga terlihat variasi waktu mempengaruhi ketebalan lapisan elektrolit CSZ. Pengukuran ketebalan lapisan elektrolit CSZ dilakukan dengan cara berikut:



Gambar 3.4. (a) Tebal awal substrat NiO-CSZ sebelum deposisi CSZ (b) Tebal akhir setelah deposisi CSZ

Dengan $d_{NiO-CSZ}$ merupakan tebal awal substrat NiO-CSZ, $d_{NiO-CSZ/CSZ}$ merupakan tebal *bilayer* NiO-CSZ (substrat NiO-CSZ setelah dilapisi CSZ), dan W merupakan tebal lapisan CSZ.

Vidi Moorene, 2014

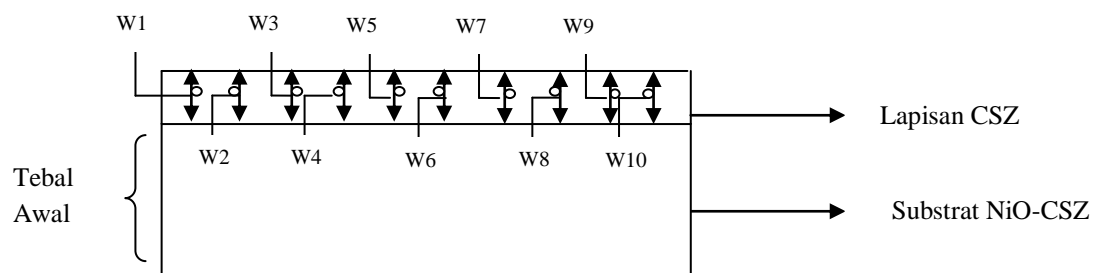
PEMBUATAN BILAYER ANODE (NiO-CSZ) - ELEKTROLIT CSZ DENGAN METODE ELECTROPHORETIC DEPOSITION

Universitas Pendidikan Indonesia | repository.upi.edu | perpustakaan.upi.edu

1. Mula-mula dilakukan pengukuran tebal awal substrat NiO. Setelah dilakukan deposisi CSZ di atas substrat, dilakukan kembali pengukuran ketebalan substrat yang telah dilapisi CSZ seperti ditunjukkan gambar 3.4 (a).
2. Setelah dilakukan deposisi CSZ di atas substrat NiO-CSZ, maka dilakukan kembali pengukuran ketebalan sampel tersebut. Jika terdapat perbedaan antara ketebalan akhir setelah deposisi CSZ dengan ketebalan awal seperti yang ditunjukkan pada gambar 3.4 (b), maka selisih antara ketebalan akhir dengan ketebalan awal merupakan nilai ketebalan lapisan CSZ seperti yang ditunjukkan pada persamaan (3.8.1).

$$W = d_{NiO-CSZ/CSZ} - d_{CSZ} \quad (3.8.1)$$

3. Jika lapisan CSZ yang terbentuk di atas substrat NiO-CSZ tidak homogen (rata), maka dilakukan pengukuran ketebalan di beberapa titik sepanjang lapisan CSZ terdeposisi seperti yang ditunjukkan pada gambar 3.5. Hal ini bertujuan agar ketebalan lapisan CSZ yang terbentuk di ukur di beberapa titik tersebut mewakili ketebalan lapisan CSZ yang terdeposisi di sepanjang substrat NiO-CSZ.



Gambar 3.5. Titik-titik pengukuran tebal lapisan CSZ diatas substrat NiO-CSZ

Pengukuran ketebalan lapisan CSZ di ambil pada 10 titik yang berbeda sehingga dilakukan pengukuran seperti langkah 1 dan 2 sebanyak 10 kali dan diperoleh 10 nilai W atau ketebalan lapisan CSZ. Karena ada 10 nilai ketebalan CSZ, maka ketebalan lapisan CSZ merupakan rata-rata dari sepuluh nilai W seperti yang ditunjukkan pada persamaan (3.8.2).

$$d_{CSZ} = \frac{W1 + W2 + W3 + W4 + W5 + W6 + W7 + W8 + W9 + W10}{10} \quad (3.8.2)$$

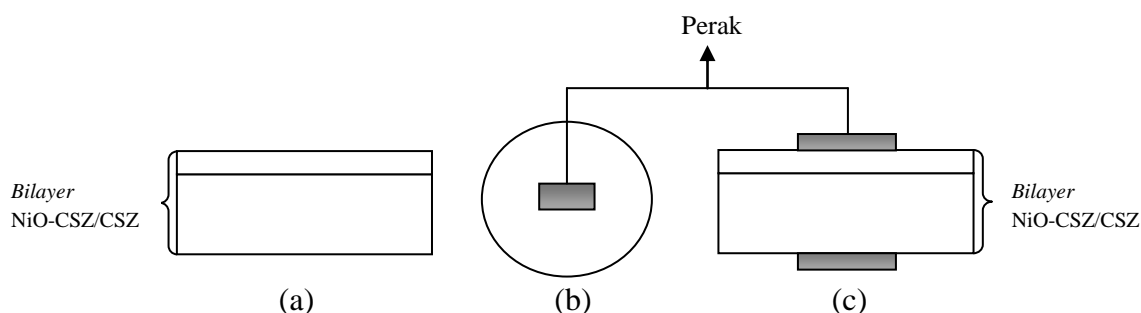
Keterangan : d_{CSZ} = ketebalan rata-rata lapisan CSZ

W1, W2,, W10 = ketebalan lapisan CSZ pada titik 1 sampai 10.

Selain itu, sampel *bilayer* NiO-CSZ/CSZ yang telah di ukur ketebalan akan dilihat strukturnya menggunakan mikroskop optik MEIJI TECHNO JAPAN dilengkapi dengan kamera Canon DS126371 DC 7,4 V dengan perbesaran 5x. Hal ini bertujuan untuk membandingkan struktur *bilayer* NiO-CSZ/CSZ dengan substrat NiO-CSZ sebelum dilapisi CSZ sehingga diketahui apakah telah terbentuk lapisan CSZ di atas substrat.

3.8.3 Sifat Listrik Lapisan CSZ

Sifat listrik yang dianalisis pada penelitian ini adalah konduktivitas ionik dari lapisan CSZ. Adapun sebelum dilakukan pengukuran konduktivitas ionik lapisan CSZ terlebih dahulu dilakukan preparasi sampel NiO-CSZ yang telah di deposisi CSZ (*bilayer* NiO-CSZ). Preparasi sampel *bilayer* NiO-CSZ/CSZ berupa pelapisan pasta perak pada kedua permukaan dengan menggunakan metode *screen printing* yang bertujuan sebagai kontak ohmik pada sampel. Pelapisan perak dilakukan tidak di seluruh permukaan *bilayer* melainkan pada luas daerah tertentu seperti yang ditunjukkan pada gambar 3.6. Hal ini dimaksudkan agar tidak terjadi kontak langsung antara perak dengan perak maupun perak dengan substrat NiO-CSZ sebagaimana diketahui bahwa NiO-CSZ bersifat konduktor sama halnya seperti perak. Sebelum dilakukan pengukuran, terlebih dahulu *bilayer* NiO-CSZ/CSZ di reduksi pada suhu 700°C selama 1 jam.

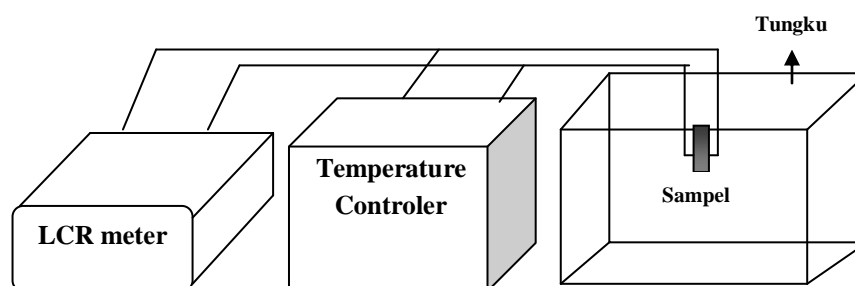


Gambar 3.6. (a) Bilayer NiO-CSZ/CSZ (b) tampak atas bilayer setelah pemberian pasta perak (c) tampak samping bilayer setelah pemberian pasta perak

Pengaruh waktu deposisi lapisan CSZ terhadap konduktivitas ionik lapisan CSZ akan dihitung berdasarkan hasil impedansi yang terukur. Konduktivitas berkaitan dengan nilai impedansi atau resistansi seperti yang ditunjukkan pada persamaan (2.7.6).

$$\sigma = \frac{l}{R \cdot A} \quad (2.7.6)$$

Dengan σ merupakan konduktivitas ionik lapisan CSZ (mS/cm), l merupakan tebal lapisan CSZ (cm), R merupakan hambatan atau resistansi ionik (Ohm), dan A merupakan luas permukaan elektroda (cm²). Selain resistansi, variabel yang perlu diketahui untuk memperoleh nilai konduktivitas ionik lapisan CSZ adalah luas permukaan dan ketebalan lapisan CSZ. Karena lapisan perak tidak diseluruh permukaan lapisan CSZ, maka luas permukaan untuk mengetahui konduktivitas ionik lapisan CSZ adalah luas permukaan yang terlapsi perak saja. Sedangkan ketebalan lapisan CSZ dapat diperoleh berdasarkan pengukuran ketebalan rata-rata sebelumnya pada subbab 3.8.2. Pengukuran impedansi menggunakan LCR meter dapat dilihat seperti pada gambar 3.7.



Gambar 3.7. Pengukuran impedansi menggunakan LCR meter

Dalam pengukuran impedansi lapisan elektrolit CSZ, terdapat beberapa parameter sebagai berikut:

1. *Bilayer* NiO-CSZ/CSZ dipanaskan mulai dari suhu 600°C hingga 300°C dengan penurunan suhu masing-masing sebesar 100°C

2. Frekuensi yang digunakan pada pengukuran menggunakan LCR meter yakni 20 Hz, 50, 70, 100, 300, 500, 700, 1 kHz, 3 k, 5 k, 7 k, 10 k, 30 k, 50 k, 70 k, 100 k, 300 k, 500 k, 700 k, 1 MHz, 2 M, 3 M, 4 M, dan 5 M.

Penentuan konduktivitas ionik lapisan CSZ dapat diperoleh berdasarkan langkah-langkah sebagai berikut.

1. Berdasarkan pengukuran yang dilakukan, diperoleh data berupa impedansi *real* (Z'), sudut fase (θ), serta impedansi *imaginer* (Z'') yang diperoleh dari perkalian Z' terhadap $\tan \theta$ ($Z''=Z' \cdot \tan \theta$). Untuk memperoleh nilai konduktivitas ionik, di cari terlebih dahulu nilai resistansi ionik lapisan CSZ
2. Setelah impedansi *real* (Z') dan impedansi *imaginer* (Z'') diperoleh, maka dapat direpresentasikan grafik impedansi *real* (Z') terhadap impedansi *imaginer* (Z''). Hasil plot grafik yang diperoleh berupa grafik seperti pada gambar 2.11 pada subbab 2.7. Berdasarkan grafik pada gambar 2.11, terdapat 2 titik perpotongan terhadap sumbu-x yakni R_g dan R_g+R_{gb} . Titik potong R_g menunjukkan tahanan butir elektrolit padat sedangkan R_g+R_{gb} menunjukkan tahanan butir dan batas butir yang tidak lain merupakan tahanan ionik elektrolit padat. Untuk memperoleh titik perpotongan tersebut dapat dibantu dengan menggunakan program *Z-View*.
3. Impedansi atau tahanan ionik yang diperoleh digunakan dalam menentukan nilai konduktivitas ionik. Konduktivitas ionik lapisan elektrolit padat CSZ diperoleh dengan membagi tebal lapisan CSZ dengan nilai tahanan ionik dan luas permukaan elektroda seperti yang ditunjukkan pada persamaan 8.5.
4. Energi aktivasi lapisan elektrolit padat CSZ dapat diperoleh dengan memanfaatkan hubungan Arrhenius seperti yang ditunjukkan pada persamaan (2.8d).

$$\ln \sigma \cdot T = \ln A - \frac{E_a}{k} \frac{1}{T} \quad (2.8d)$$

Berdasarkan persamaan (2.8d), dapat di plot grafik antara $\ln \sigma \cdot T$ terhadap $1/T$ membentuk sebuah grafik linear $y = mx + c$. Parameter y merupakan $\ln \sigma \cdot T$, m merupakan nilai E_a/k yang tidak lain kemiringan grafik, parameter x merupakan $1/T$, dan c merupakan nilai $\ln A$ yang dapat digunakan untuk

mencari nilai konduktivitas pada suhu tertentu. Energi aktivasi diperoleh berdasarkan dari plot grafik ini dan nilai energi aktivasi lapisan elektrolit padat adalah kemiringan / gradien ($-E_a/k$) grafik dikalikan dengan konstanta Boltzmann (k).