

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI CERAMIC METAL Ni-YSZ  
(NIKEL- YTTRIA STABILIZED ZIRCONIA) DARI PASIR ZIRKON LOKAL PADA  
BERBAGAI KOMPOSISI Ni:YSZ**

**SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF CERAMIC METAL Ni-YSZ  
PREPARED FROM LOCAL ZIRCON SAND AT VARIOUS Ni:YSZ  
COMPOSITION**

**Karima Apriany<sup>a</sup>, Fitria Rahmawati<sup>a\*</sup>, Eddy Heraldya<sup>a</sup>, Dani G Syarif<sup>b</sup>, Syoni  
Soepriyanto<sup>c</sup>**

<sup>a</sup> *Research Group of Solid State Chemistry & Catalysis, Program Studi Kimia, Universitas  
Sebelas Maret, Jl. Ir. Sutami 36 A, Kentingan Surakarta 57126*

<sup>b</sup> PTNBR Badan Tenaga Atom Nasional, Jl. Taman Sari, Bandung 40132

<sup>c</sup> Teknik Metalurgi, Fakultas Teknik Pertambangan dan Perminyakan, Institut Teknologi  
Bandung, Jl. Ganesha 10, Bandung 40132

\* email: [fitria@mipa.uns.ac.id](mailto:fitria@mipa.uns.ac.id)

DOI : 10.20961/alchemy.v13i2.2384

*Received 02 December 2017, Accepted 28 April 2017, Published online 1 September 2017*

**ABSTRAK**

Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis *ceramic metal (cermet)* Ni-YSZ, dimana YSZ (*Yttria Stabilized-Zirconia*) disintesis dari pasir zircon,  $ZrSiO_4$  lokal yang merupakan sisa tambang timah di Pulau Bangka, Indonesia. YSZ yang disintesis merupakan *zirconia*,  $ZrO_2$ , yang di *doping* dengan 8 % mol yttrium dioksida. Sintesis dilakukan dengan metode *solid state reaction* dan dikarakterisasi struktur kristal dan parameter selnya dengan analisis XRD yang dilanjutkan dengan *refinement Le Bail*, analisis morfologi permukaan dan analisis impedansi untuk mengetahui konduktivitas ionik material. *Cermet* Ni-YSZ disintesis pada variasi komposisi Ni:YSZ yaitu 20:80; 30:70; dan 40:60 (b/b). Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa Ni-YSZ berada dalam dua fasa yaitu fasa Ni dan fasa YSZ tanpa adanya fasa ketiga. Hal ini menunjukkan bahwa Ni dan YSZ tidak mengalami *solid state reaction* selama sintesis. Dalam *cermet Ni-YSZ*, fasa Ni berada dalam struktur kubik, dan YSZ juga berada dalam struktur kubik. Studi morfologi menunjukkan bahwa penambahan Ni ke dalam YSZ menyebabkan morfologi material menjadi kasar dengan ukuran butir besar. *Cermet* Ni-YSZ memiliki konduktivitas tertingggi pada komposisi Ni:YSZ 20:80.

**Kata kunci:** *cermet*, konduktivitas, lokal zircon, Ni-YSZ, *solid state reaction*

**ABSTRACT**

This research synthesized a *ceramic metal (cermet)* Ni-YSZ, in which the YSZ (*yttria stabilized-zirconia*) was synthesized from the local zircon sand,  $ZrSiO_4$ , as a side product of tin mining plant in Bangka island, Indonesia. The synthesized YSZ in this research is *zirconia*,  $ZrO_2$  doped by 8 % mol of yttrium dioxide. The synthesis used *solid*

state reaction method and the result was characterized its crystal structure and its cell parameters by XRD analysis equipped with Le Bail refinement, surface morphology analysis, and an impedance analysis to understand its ionic conductivity. The *cermet* Ni-YSZ was synthesized at a various composition of Ni:YSZ i.e., 20:80, 30:70, and 40:60 (b/b). The analysis shows that Ni-YSZ is in two phases of Ni and YSZ without any presence of a third phase. It indicates that there was no solid state reaction between Ni and YSZ during synthesis. In this Ni-YSZ *cermet*, the Ni phase in a cubic structure, and the YSZ is also in a cubic structure. Morphological study shows that the addition of Ni to YSZ allows the morphology to become more roughness with larger grain size. This research found that the Ni-YSZ 20:80 has highest ionic conductivity.

**Keywords:** *cermet*, conductivity, local zircon, Ni-YSZ, solid state reaction

## PENDAHULUAN

Pertambangan timah tersebar di Indonesia, salah satunya adalah pertambangan timah yang berada di Pulau Bangka. Pabrik pertambangan timah ini menghasilkan produk samping yaitu pasir zirkon ( $ZrSiO_4$ ) dengan zirkonia ( $ZrO_2$ ) sebagai kandungan utama. Pasir zirkon masih memiliki nilai ekonomi yang rendah (Poernomo, 2012). Berdasarkan kajian yang dilakukan Suseno (2013), harga pasir zirkon di Indonesia yaitu sekitar USD 0,72/ton. Upaya peningkatan nilai ekonomi pasir zirkon yang dilakukan seperti pemanfaatan pasir zirkon lokal Pulau Bangka sebagai prekursor pembuatan zirkonia yang dilakukan oleh Soepriyanto *et al.* (2005) dimana zirkonia disintesis dengan menggunakan metode fusi kaustik kemudian dilanjutkan dengan pelindian asam dan presipitasi gel *aging*.

Zirkonia merupakan suatu material keramik yang memiliki stabilitas yang baik dan luas permukaan yang tinggi. Harga zirkonia dipasaran mencapai USD 40/500 g (Advanced Materials, 2016). Selain itu, zirkonia juga memiliki potensi sebagai elektrolit padat dan elektroda untuk *solid oxide fuel cell*. Elektrolit padat berbasis zirkonia seperti *Ytria-Stabilized Zirconia* (YSZ) banyak digunakan dalam aplikasi *solid oxide fuel cell* (SOFC) (Rahmawati, 2012; dan Syarif *et al.*, 2013).

*Solid Oxide Fuel Cell* (SOFC) merupakan suatu sel elektrokimia yang memproduksi listrik secara langsung dengan mengoksidasi bahan bakar. Proses oksidasi bahan bakar terjadi di anoda. Material anoda komersial yang saat ini banyak digunakan dalam aplikasi SOFC yaitu *ceramic metal (cermet)* Ni-YSZ. Material *cermet* Ni-YSZ memiliki aktivitas katalitik, stabilitas kimia dan mekanik yang baik. Selain itu, Nikel (Ni) dan YSZ memiliki koefisien ekspansi termal yang hampir mirip (YSZ:  $11 \times 10^{-6} K^{-1}$  dan Ni:  $17 \times 10^{-6} K^{-1}$ ) sehingga Ni sangat cocok dikombinasikan dengan YSZ (Yoo *et al.*, 2011). Keberagaman sintesis *cermet* Ni-YSZ dengan menggunakan bahan komersial telah

banyak dikembangkan seperti metode presipitasi (Chen *et al.*, 2008), *spray* pirolisis (Hashigami *et al.*, 2014), *electroless* (Mukhopadhyay *et al.*, 2012), metode *solid state reaction* (Kim *et al.*, 2013), dan proses mekanik (Cho and Choi, 2008).

Terkait dengan kelimpahan bahan baku zirkonia di Indonesia dan untuk meningkatkan nilai ekonomi dari pasir zirkon maka pada penelitian ini dilakukan preparasi *cermet* Ni-YSZ dengan bahan dasar pasir zirkon yang berasal dari Pulau Bangka, Indonesia. Zirkonia disintesis dengan menggunakan metode fusi kaustik kemudian zirkonia di *doping* dengan ion-ion yttrium dan dikompositkan dengan Ni. Pembuatan *cermet* Ni-YSZ menggunakan metode *solid state reaction*. Metode *solid state reaction* diketahui sebagai metode yang lebih sederhana untuk mensintesis bahan-bahan anorganik (Ismunandar, 2006). Selain itu, pada penelitian ini akan dilakukan studi komprehensif tentang struktur kristal, morfologi dan perubahan karakter konduktivitas dari YSZ dan YSZ yang dikompositkan dengan Ni.

## **METODE PENELITIAN**

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah konsentrat zirkon (PT Timah, Bangka), HCl 37% p.a (Mallinckrodt), NH<sub>3</sub> 25% p.a (Merck), NaOH (Merck), Ni (Merck), Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Sigma-Aldrich), air bebas mineral, pasta perak 60 %, kawat perak 0,8 mm, dan Gas campuran Ar + 7% H<sub>2</sub>.

### **Sintesis ZrO<sub>2</sub> Dengan Menggunakan Metode Fusi Kaustik**

Material ZrO<sub>2</sub> disintesis dengan menggunakan metode fusi kaustik. Konsentrat zirkon (ZrSiO<sub>4</sub>) dan NaOH dicampur dan digerus dengan rasio molar stoikiometri dari ZrSiO<sub>4</sub>:NaOH yaitu 1:4 kemudian didekomposisi dengan suhu 800 °C selama 2 jam sehingga didapatkan bubuk berwarna putih abu-abu (frit). Frit tersebut kemudian dilindi dengan menggunakan air bebas mineral dengan rasio air:frit sebesar 10 mL per 1 g frit selama 15 menit. Setelah dilakukan pelindian, campuran tersebut disaring untuk memisahkan filtrat dan residu. Residu tersebut dikeringkan pada suhu 100 °C selama 1 jam. Residu A yang telah kering kemudian dilindi kembali dengan menggunakan HCl 3,5 M dengan rasio HCl : residu A sebesar 10:1 dalam kondisi diaduk dan dipanaskan, suhu pemanasan tidak lebih dari 80 °C sehingga didapatkan larutan berwarna kuning keruh. Larutan berwarna kuning keruh tersebut kemudian disaring sehingga didapatkan larutan berwarna kuning jernih. Larutan kuning jernih merupakan larutan ZrOCl<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O (ZOC) kemudian ditambahkan larutan NH<sub>4</sub>OH 3M secara perlahan-lahan kedalam larutan ZOC hingga terbentuk endapan berwarna putih dan dilakukan presipitasi gel *aging* selama

24 jam hingga didapatkan gel putih yang kemudian disaring. Gel putih tersebut dikeringkan pada suhu 150 °C selama 2 jam sehingga didapatkan serbuk  $Zr(OH)_4$  kemudian dikalsinasi dengan suhu 800 °C selama 5 jam hingga didapat serbuk  $ZrO_2$  berwarna putih.

### **Sintesis YSZ Dengan Menggunakan Metode *Solid-State Reaction***

Material YSZ disintesis dengan menggunakan metode *solid-state reaction*. Serbuk  $ZrO_2$  di *doping* dengan  $Y_2O_3$  dengan rasio berat  $ZrO_2:Y_2O_3$  sebesar 6,2:1 kemudian dicampur dan *ball mill* 2 jam dengan kecepatan 350 rpm sehingga didapatkan serbuk campuran. Kemudian serbuk dikompaksikan dengan tekanan 20 MPa sehingga menjadi pellet, dikalsinasi dengan suhu 500 °C selama 2 jam dan dilanjutkan dengan proses *sintering* selama 1250 °C selama 3 sehingga didapat pellet dengan warna putih keruh.

### **Sintesis *Cermet* Ni-YSZ**

Bahan baku material yang digunakan yaitu serbuk Ni dan YSZ hasil sintesis sebelumnya. Dilakukan pencampuran serbuk Ni dan YSZ dengan komposisi perbandingan berat Ni:YSZ sebesar 20:80 (NiY28), 30:70 (NiY37), dan 40:60 (NiY46). Ni dan YSZ dicampurkan dengan menggunakan etanol sebagai medium pendispersi kemudian disonikasi selama 1 jam dan dikeringkan pada suhu 60 °C selama 5 jam. Komposit tersebut kemudian dikompaksikan dengan menggunakan tekanan 0,06 Mpa pada kondisi vakum. Pellet tersebut kemudian *sintering* pada suhu 1350 °C selama 3 jam dengan kecepatan pemanasan 10 °C/min dan direduksi dengan menggunakan gas campuran 7 %  $H_2 + Ar$  pada suhu 800 °C selama 1 jam untuk menghasilkan material Ni-YSZ (NiY).

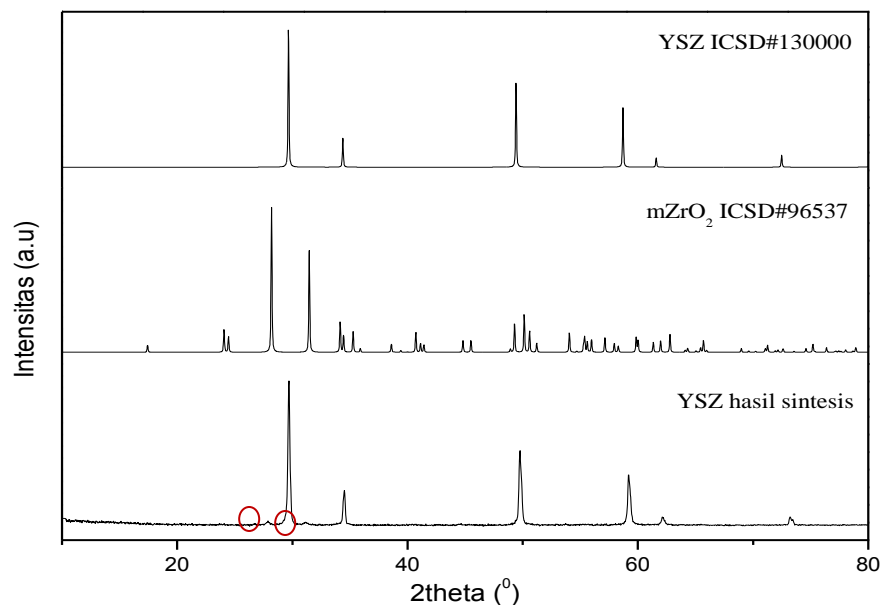
### **Karakterisasi Material**

Hasil sintesis dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X yang dilanjutkan dengan *Le Bail refinement* pada perangkat lunak *Rietica* untuk menganalisa struktur kristal dan parameter sel. SEM digunakan untuk menganalisa morfologi material. Konduktivitas elektronik dari sampel diukur dengan pengukuran impedansi elektrokimia menggunakan LCR meter (GW Instek) dalam rentang frekuensi dari 20 Hz - 5 MHz dan pada suhu antara 300 - 600 °C. Pasta perak dan perak Mesh (Nilaco, Japan) digunakan sebagai elektroda atau *current collector* yang menghubungkannya dengan alat ukur impedansi.

## **PEMBAHASAN**

Hasil karakterisasi dari YSZ yang disintesis dari pasir zirkon dengan menggunakan difraksi sinar-X yang ditunjukkan pada Gambar 1. Pola difraksi menunjukkan bahwa YSZ hasil sintesis memiliki kesesuaian puncak - puncak mayor

dengan pola difraksi dengan standar YSZ ICSD#130000. Selain itu, pola difraksi dari YSZ hasil sintesis juga menunjukkan adanya puncak minor pada  $2\theta$  27,9° dan 31,0° yang menunjukkan adanya fasa monoklinik zironia. Hal ini menunjukkan bahwa dalam YSZ yang disintesis dari pasir zircon Pulau Bangka, masih terdapat monoklinik *zirconia* yang belum terkonversi menjadi YSZ yang berstruktur kubik seperti pada YSZ ICSD#130000.

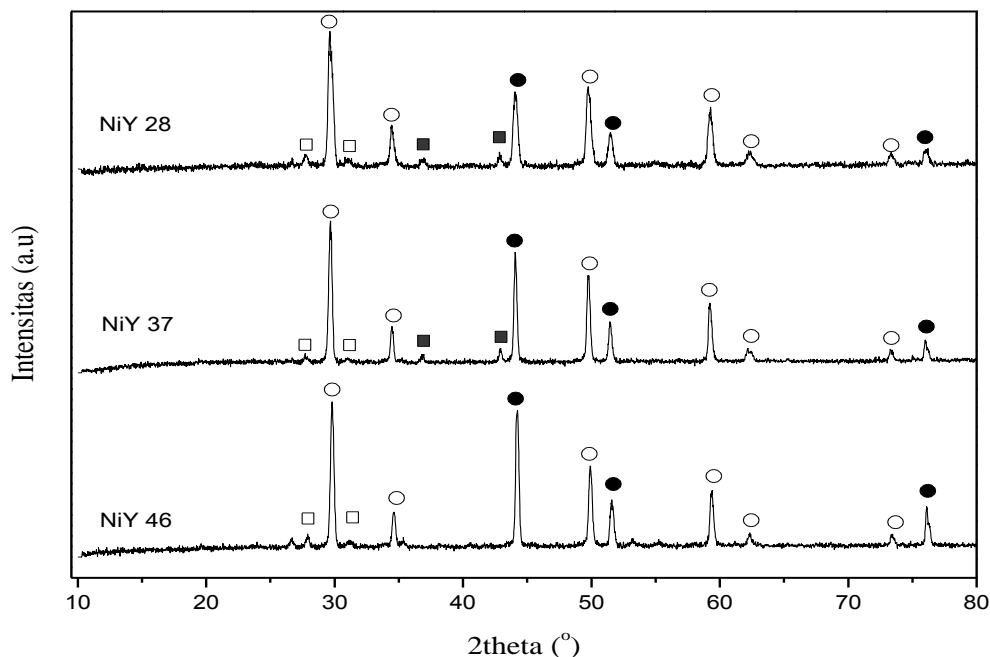


**Gambar 1.** Perbandingan pola difraksi YSZ hasil sintesis dengan pola difraksi YSZ dari ICSD #130000 dan  $ZrO_2$  monoklinik dari ICSD #96537. Puncak *zirconia* monoklinik ditandai dengan lingkaran berwarna merah.

Tahap kedua merupakan pembuatan komposit Ni dengan YSZ menggunakan metode *solid state reaction* dengan pemanasan hingga 1350 °C selama 3 jam hingga menghasilkan NiO-YSZ. Komposit NiO-YSZ kemudian direduksi dengan menggunakan campuran gas Ar + 7 %  $H_2$  sehingga menghasilkan *cermet* Ni-YSZ. Reaksi yang berlangsung sebagai berikut (Talebi *et al.*, 2010) :



Perbandingan pola difraksi Ni-YSZ pada berbagai komposisi ditunjukkan pada Gambar 2. Dari perbandingan tersebut terlihat bahwa hanya sampel NiY46 yang tereduksi sempurna, sedangkan sampel NiY28 dan NiY37 masih terdapat puncak NiO dengan intensitas kecil. Hal tersebut terjadi dikarenakan Ni tidak terdistribusi secara merata sehingga pada saat dilakukan proses reduksi, masih terdapat sejumlah Ni yang tidak tereduksi.



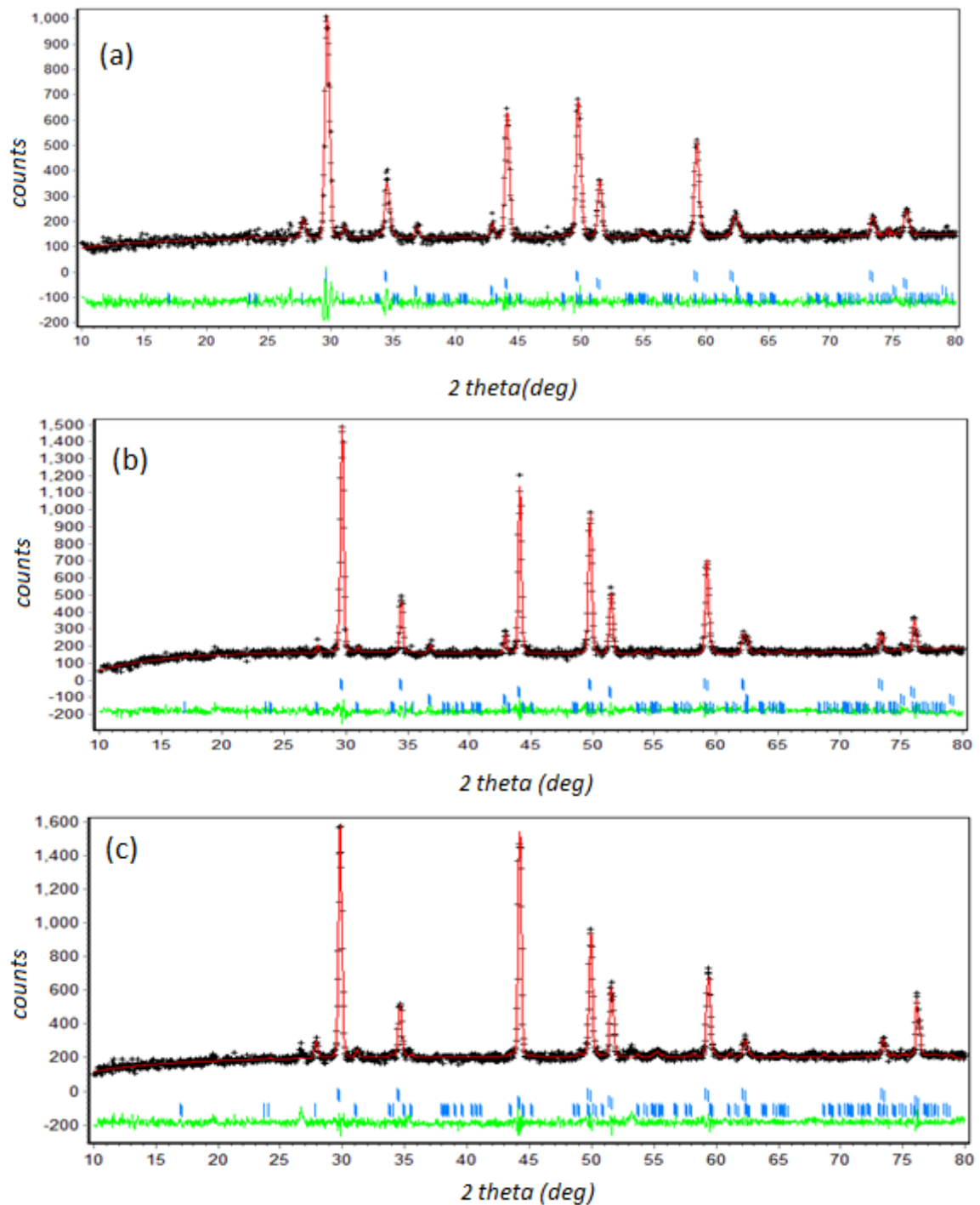
**Gambar 2.** Perbandingan pola difraksi NiY28, NiY37, dan NiY46  
 ■ = NiO, □ = ZrO<sub>2</sub> monoklinik, ○ = YSZ, ● = Ni

**Tabel 1.** Parameter sel dan struktur kristal Ni dan YSZ dalam *cermet* Ni-YSZ pada berbagai komposisi yang diperoleh dari *refinement Le Bail* dengan input data empat Ni kubik, YSZ kubik, NiO dan ZrO<sub>2</sub> monoklinik.

Parameter sel	NiY28		NiY37		NiY46	
	Ni <i>Kubik</i>	YSZ <i>Kubik</i>	Ni <i>Kubik</i>	YSZ <i>Kubik</i>	Ni <i>Kubik</i>	YSZ <i>Kubik</i>
a (Å)	3,524(8)	5,138(1)	3,524(4)	5,136(8)	3,523(2)	5,140(5)
b (Å)	3,524(8)	5,138(1)	3,524(4)	5,136(8)	3,523(2)	5,140(5)
c (Å)	3,524(5)	5,138(1)	3,524(4)	5,136(8)	3,523(2)	5,140(5)
V (Å <sup>3</sup> )	43,77(2)	135,67(5)	43,791(9)	135,51(4)	43,742(5)	135,82(2)
α=β=γ	90	90	90	90	90	90
R <sub>p</sub> (%)		6,06		5,89		5,46
R <sub>wp</sub> (%)		9,22		7,75		7,69
<i>Space Group</i>	<i>F m 3 m</i>	<i>F m 3 m</i>	<i>F m 3 m</i>	<i>F m 3 m</i>	<i>F m 3 m</i>	<i>F m 3 m</i>

Le Bail *refinement* terhadap data difraksi NiY28, NiY37, dan NiY46 menghasilkan plot Le Bail yang tercantum pada Gambar 3. Hasil *refinement* menunjukkan bahwa *cermet* Ni-YSZ berada dalam empat fasa yaitu Ni yang berstruktur kubik, YSZ kubik, NiO, dan ZrO<sub>2</sub> monoklinik (Tabel 1). Hal ini menunjukkan bahwa penambahan Ni ke dalam YSZ tidak merubah struktur kristal YSZ, yaitu tetap berada pada struktur kubik. Sisa ZrO<sub>2</sub> monoklinik juga masih ada, dan oksida nikel yang terbentuk selama proses *sintering* pada suhu 1350 °C belum berhasil direduksi semuanya untuk kembali menjadi Ni. Reduksi tidak sempurna tersebut dapat mengurangi kinerja Ni-YSZ sebagai material anoda pada *solid oxide fuel cell*, karena logam Ni sebenarnya memiliki fungsi penting sebagai medium

transfer elektron menuju sirkuit eksternal. Selain itu Ni juga berfungsi sebagai katalis reaksi oksidasi bahan bakar yang terjadi di dalam anoda selama SOFC beroperasi.



**Gambar 3.** Hasil *refinement* data difraksi sinar X *cermet* Ni-YSZ pada berbagai komposisi, (a) NiY28, (b) NiY37, dan (c) NiY46.

+ : data eksperimen, --- : hasil kalkulasi, ---: perbedaan data eksperimen dan hasil kalkulasi.

Penambahan Ni diketahui juga dapat berpengaruh pada intensitas pada puncak pola difraksi YSZ (Xi *et al.*, 2014 dan Kim *et al.*, 2013). Namun hasil penelitian ini menunjukkan bahwa penambahan Ni tidak berpengaruh signifikan terhadap penurunan

intensitas dari puncak-puncak karakteristik YSZ, seperti terlihat pada Gambar 2. Hal ini kemungkinan karena adanya sisa  $ZrO_2$  monoklinik dan NiO yang tidak tereduksi kembali menjadi Ni, sehingga mengurangi interaksi antara Ni dengan YSZ. Interaksi Ni dengan YSZ juga tidak mempengaruhi *space group* (gugus ruang) dari masing-masing komponen. Hal ini menunjukkan bahwa simetri dari unit kristal Ni maupun YSZ tidak dipengaruhi oleh interaksi antara keduanya. Selain itu, interaksi antara Ni dengan YSZ juga tidak mempengaruhi nilai parameter sel masing-masing, seperti terlihat pada Tabel 1. Dalam Tabel 1 terlihat bahwa dengan memperhitungkan standar deviasi dari masing-masing nilai parameter maka bisa disimpulkan bahwa sel parameter masih dalam kisaran nilai yang sama.

YSZ yang disintesis dalam penelitian ini memiliki ukuran kristalin 46 – 53 nm, masih berada dalam kisaran ukuran kristal YSZ yang disintesis dari  $ZrO_2$  komersial, yaitu 33 – 46 nm (Xi *et al.*, 2014). Adapun ukuran kristalin Ni semakin meningkat dengan bertambahnya komposisi Ni dalam *cermet* Ni-YSZ. Namun ternyata hal itu juga diikuti oleh peningkatan ukuran kristalin YSZ meskipun komposisi YSZ menurun dengan bertambahnya Ni (Tabel 2). Meskipun ukuran kristalin dihitung dengan rumus Scherrer yang lebih bersifat perkiraan, namun hal ini mengindikasikan bahwa keberadaan Ni mempengaruhi interaksi antar unit kristal YSZ, sehingga ukuran kristalin butir YSZ juga ikut menjadi lebih besar, seperti terlihat pada Tabel 2.

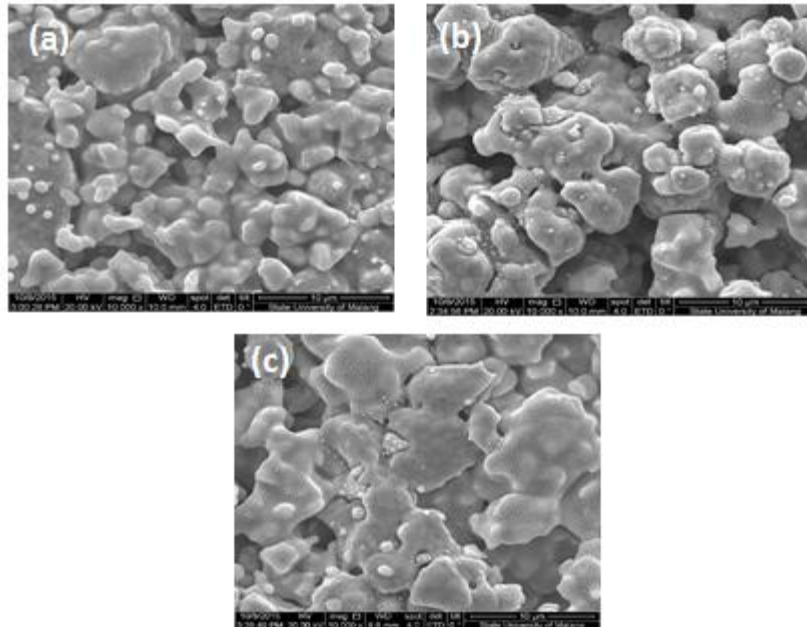
**Tabel 2.** Estimasi ukuran kristal YSZ, Ni dan YSZ hasil reduksi dengan menggunakan persamaan Scherrer.

	YSZ		NiY28		NiY37		NiY46	
	Ni	YSZ	Ni	YSZ	Ni	YSZ	Ni	YSZ
Ukuran kristal (nm)	45,68	23,50	21,17	42,05	31,12	44,20	33,19	

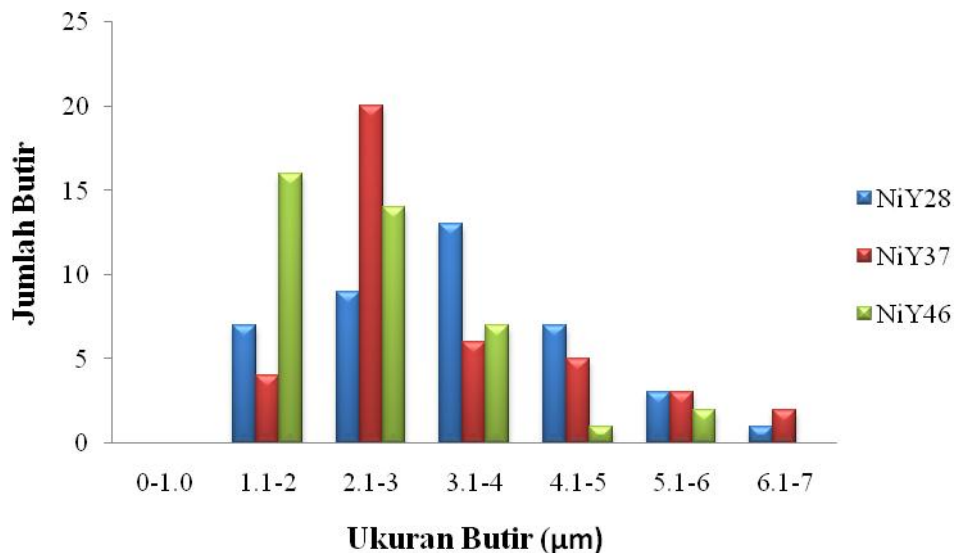
Setelah proses reduksi, butiran dari *cermet* Ni-YSZ semakin terlihat dan semakin besar. Visualisasi bentuk butir *cermet* Ni-YSZ dapat dilihat pada Gambar 4. Semakin besar konten Ni yang ditambahkan semakin besar ukuran butiran yang dihasilkan. Hasil analisis Gambar SEM dengan perangkat lunak MeasureIT menunjukkan bahwa distribusi tertinggi ukuran butir NiY37 adalah pada 2,1 - 3,0  $\mu\text{m}$ . Adapun distribusi ukuran butir NiY46 berada pada diameter 1,1 – 2,0  $\mu\text{m}$ , sedangkan distribusi ukuran butir NiY28 tertinggi berada pada kisaran 3,01 - 4,0  $\mu\text{m}$ . Berdasarkan penelitian Kong *et al.*, (2007) dan Chen *et al.*, (2008) diperoleh bahwa material Ni-YSZ yang disintesis dengan bahan-bahan komersil memiliki ukuran butir rata-rata kurang dari 1,5  $\mu\text{m}$ . Hasil penelitian juga menunjukkan bahwa semakin tinggi komposisi Ni menyebabkan ukuran butiran Ni-YSZ



semakin kecil. Sebaran ukuran butiran *cermet* Ni-YSZ pada berbagai komposisi dapat dilihat pada Gambar 5. Diketahui bahwa butiran Ni dapat dengan mudah tumbuh menjadi ukuran yang lebih besar dibandingkan dengan butiran YSZ selama proses *sintering*, dikarenakan suhu densifikasi Ni lebih kecil dari suhu densifikasi dari YSZ (Fukui *et al.*, 2004).



**Gambar 4.** Hasil analisis SEM dari (a) NiY28, (b) NiY37, (c) NiY46.



**Gambar 5.** Grafik sebaran jumlah butir vs ukuran butir *cermet* Ni-YSZ

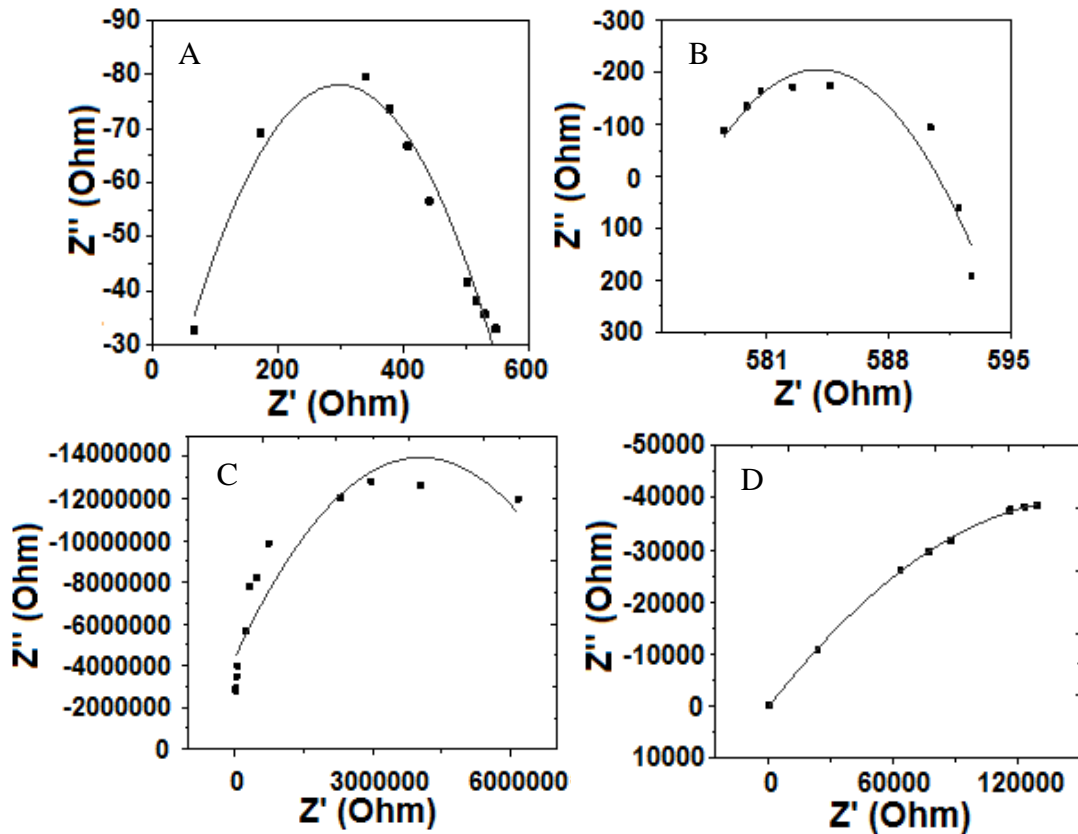
Pertumbuhan butir pada *cermet* Ni-YSZ dimungkinkan berpengaruh terhadap konduktivitas listrik, karena pertumbuhan butiran besar dapat memperkecil luasan *triple phase boundary* (TPB) dan dapat memperkecil laju difusi bahan bakar pada saat SOFC dioperasikan. Selain ukuran butiran, struktur pori dari material anoda juga faktor lain yang

bias mempengaruhi kinerja sel bahan bakar, karena struktur berpori dapat menyediakan TPB yang panjang dan memungkinkan difusi bahan bakar lebih besar (Chen *et al.*, 2008).

Konduktivitas material YSZ dan *cermet* Ni-YSZ ditentukan melalui pengukuran impedansi pada frekuensi 20 Hz – 2 MHz. Plot antara  $Z'$  (impedansi real) terhadap  $Z''$  (impedansi imajiner), disebut dengan plot Nyquist ditunjukkan di Gambar 6. Kurva impedansi dalam plot Nyquist selanjutnya diproses *fitting* dengan perangkat lunak Origin 6.0 untuk mendapatnya persamaan kurva yang sesuai dan menentukan nilai resistansi,  $R$ , dari material yang diukur. Selanjutnya nilai konduktivitas ditentukan dengan persamaan (2).

$$\sigma = \frac{1}{R} \frac{l}{A} \dots \dots \dots (2)$$

$\sigma$  adalah konduktivitas ( $S.cm^{-1}$ ),  $R$  adalah resistansi (Ohm),  $l$  adalah ketebalan material yang diukur (cm), dan  $A$  adalah luas area aktif elektroda ( $cm^2$ ). Hasil perhitungan konduktivitas ditampilkan di Tabel 3. Berdasarkan Tabel 3, konduktivitas NiY28 lebih tinggi dibandingkan dengan YSZ, NiY37 dan NiY46. Berdasarkan *range* kapasitansi yang diperoleh, konduktivitas dari ketiga komposisi Ni-YSZ hanya menunjukkan kontribusi konduktivitas ionik. Nilai kapasitansi diperoleh dari perhitungan dengan persamaan (2).



**Gambar 6.** Plot impedansi YSZ dan *cermet* Ni-YSZ pada berbagai komposisi, (a) YSZ, (b) NiY28, (c) NiY37, dan (d) NiY46.

$$R = \frac{1}{2\pi f C} \dots\dots\dots (2)$$

R adalah resistansi (Ohm),  $f$  adalah frekuensi (Hz), dan C adalah kapasitansi (Farad). Harga kapasitansi pada kisaran mendekati  $\sim 0,1$  pF ( $1 \times 10^{-10}$  F) menunjukkan bahwa impedansi yang terukur adalah berasal dari impedansi butiran (*grain impedance*), sedangkan kapasitansi dengan nilai sekitar 1,4 nF atau  $1,4 \times 10^{-9}$  mengindikasikan bahwa impedansi berasal dari impedansi batas butiran (*grain boundary impedance*) (Martin *et al.*, 2007).

Berdasarkan Tabel 3 dapat dilihat bahwa penambahan 20% Ni dapat meningkatkan konduktivitas ionik dari  $3,18 \times 10^{-4}$  S.cm<sup>-1</sup> menjadi  $7,495 \times 10^{-3}$  S.cm<sup>-1</sup>. Namun penambahan Ni lebih banyak dapat menyebabkan penurunan konduktivitas ionik. Hal ini dimungkinkan karena butiran yang menjadi lebih besar menyebabkan penurunan luasan *triple phase boundary* yang berakibat pada penurunan konduktivitas ionik.

**Tabel 3.** Nilai konduktivitas dan kapasitansi YSZ dan Ni-YSZ pada suhu 600 °C

Materials	Capacitance (F)	Conductivity (S/cm)		
		Grain ( $\sigma_g$ )	Grain Boundary ( $\sigma_{gb}$ )	Total
NiY28	$2,721 \times 10^{-9}$	-	$7,495 \times 10^{-3}$	$7,495 \times 10^{-3}$
NiY37	$7,640 \times 10^{-12}$	$1,04 \times 10^{-8}$	-	$1,04 \times 10^{-8}$
NiY46	$2,463 \times 10^{-9}$	-	$3,29 \times 10^{-7}$	$3,29 \times 10^{-7}$
YSZ*	$4,679 \times 10^{-8}$	-	$3,18 \times 10^{-4}$	$3,18 \times 10^{-4}$

Pengukuran impedansi dalam penelitian ini dilakukan pada rentang frekuensi 20 – 5 Hz dan kisaran suhu 300 – 600 °C. Penggunaan pasta perak sebagai elektroda pengukuran impedansi tidak memungkinkan untuk melakukan pengukuran pada suhu di atas 600 °C, karena ada kemungkinan pasta perak akan meleleh dan terdifusi ke dalam material yang sedang diukur. Pengukuran suhu tinggi, > 600 °C membutuhkan pasta platina, sehingga dimungkinkan konduktivitas total dari Ni-YSZ yang terukur lebih tinggi, seperti halnya pengukuran pada Ni-YSZ 37 yang disintesis dari *zirconia* komersial, yaitu antara 170 – 240 S.cm<sup>-1</sup> (Davarpanah *et al.*, 2014).

## KESIMPULAN

Penambahan Ni ke dalam YSZ pada berbagai komposisi berat menghasilkan pola difraksi yang terdiri atas dua fasa utama Ni dan YSZ, serta fasa sisa ZrO<sub>2</sub> monoklinik yang sejak semula ada di dalam YSZ yang disintesis dari pasir zircon lokal. Selain itu juga ada sisa NiO yang tidak tereduksi kembali dalam tahap reduksi. Namun tidak ditemukan fasa baru sebagai hasil reaksi Ni dan YSZ. Penambahan Ni juga tidak merubah struktur kristal

YSZ, yaitu tetap dalam struktur kubik. Penambahan Ni menyebabkan perubahan morfologi material menjadi lebih kasar dengan butiran-butiran yang besar. Ni-YSZ dengan komposisi 20:80 atau NiY28 memiliki konduktivitas ionik tertinggi, sehingga komposisi 20:80 merupakan komposisi terbaik untuk digunakan sebagai material anoda dalam *solid oxide fuel cell*.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Hasil penelitian yang ditulis dalam manuskrip ilmiah ini merupakan bagian dari skema penelitian yang didanai oleh Kementerian Riset dan Teknologi, Republik Indonesia melalui skema INSINAS 2014-2015. Penulis menyampaikan terima kasih atas dukungan dana tersebut.

## DAFTAR PUSTAKA

- Advanced Materials, *Zirconia (ZrO<sub>2</sub>, Zirconium Oxide) Powder, Superfine Grade*, <<http://www.advancedmaterials.us/40R-0801.htm>> diakses pada 3 Agustus 2016.
- Chen, K., Lu, Z., Chen, X., Ai, N., Huang, X., Wei, B., Hu, J., and Su, W., 2008. Characteristics of NiO/YSZ Anode Based on NiO Particles Synthesized By The Precipitation Method. *Journal of Alloys and Compounds* 454, 447-453.
- Cho, H.J., and Choi, G.M, 2008. Effect of Milling Methods on Performance of Ni-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Stabilized ZrO<sub>2</sub> Anode for Solid Oxide Fuel Cell. *Journal of Power Sources* 176, 96-101.
- Davarpanah, A., Yaremchenko, A.A., Fagg, D.P., and Frade, J.R., 2014. Ni-YSZ Cermets for Solid Oxide Fuel Cell Anodes Via Two-Step Firing. *International Journal of Hydrogen Energy* 39, 15046-15056.
- Fukui, T., Murata K., Ohara, S., Abe, H., Naito, M., and Nogi, K., 2004. Morphology control of Ni-YSZ Cermet Anode for Lower Temperature Operation of SOFCs. *Journal of Power Sources* 125, 17-21.
- Hashigami, S., Yoshida, H., Ueno, D., and Inagaki, T., 2014. Improvement Of The Redox of Ni-Gadolinia Doped Ceria Anodes Due To the Use of the Composite Particles Prepared by Spray Pyrolysis Method. *Journal of Power Sources* 248, 190-195.
- Ismunandar, 2006. *Padatan Oksida Logam, Struktur, Sintesis, dan Sifat-sifatnya*. Institut Teknologi Bandung, Bandung.
- Kim, J., Cho, K.H., Kagomiya, I., and Park, K., 2013. Structural Studies of Porous Ni/YSZ Cermets Fabricated by The Solid-State Reaction Method. *Ceramics International* 39, 7467-7474.
- Kong, J., Sun, K., Zhou, D., Zhang, N., Mu, J., and Qiao, J., 2007. Ni-YSZ Gradient Anodes for Anode-Supported SOFCs. *Journal of Power Sources* 166, 337-342.

- Martin, P, Lopez, M.L., Pico, C., and Veiga, M.L., 2007.  $\text{Li}_{(4-x)}/3\text{Ti}_{(52x)}/3\text{Cr}_x\text{O}_{4(0 \leq x \leq 0.9)}$  Spinel: New Negatives for Lithium Batteries. *Solid State Sciences* 9, 521-526.
- Mukhopadhyay, M., Mukhopadhyay, J., Das, S.A., and Basu, R.N., 2012. High Performance Planar Solid Oxide Fuel Cell Fabricated With Ni-Ytria Stabilized Zirconia Anode Prepared by Electroless Technique. *International Journal of Applied Ceramic Technology* 9, 999-1010.
- Poernomo, H., 2012. *Informasi Umum Zirkonium*. BATAN Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan Yogyakarta.
- Rahmawati, F., 2012. *Zirconia-LSGM Based Material as Electrolyte for SOFC*. LAP LAMBERT Academic Publishing GmbH & Co. KG.
- Soepriyanto, S., Korda, A.A., and Hidayat, T., 2005. Development of Zircon Based Industrial Product From Zircon-Sand Concentrate of Bangka Tin Processing. *Proceeding of The 3<sup>rd</sup> International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukouka.
- Suseno, T., 2013. *Kajian Prospek Pengembangan Usaha Peningkatan Nilai Tambah Zirkon*. Badan Penelitian dan Pengembangan Teknologi Mineral dan Batubara Kementerian Energi dan Sumber Daya Mineral. Bandung.
- Syarif, D.G., Soepriyanto, S., Ismunandar., and Korda, A.A., 2013. Effect of LSGM Addition on Electrical Characteristics of 8YSZ Ceramics for Solid Electrolyte. *Journal of The Australian Ceramic Society* 49, 52-59.
- Talebi, T., Sarrafi, M.H., Hajim M., Raissi, B., and Maghsoudipour, A., 2010. Investigation on Microstructure of NiO-YSZ Composite And Ni-YSZ Cermet for SOFCs. *International Journal of Hydrogen Energy* 35, 9440-9447.
- Xi, X., Abe, H., and Naito, M., 2014. Effect Of Composition on Microstructure and Polarization Resistance of Solid Oxide Fuel Cell Anode Ni-YSZ Composites Made by Co-Precipitation. *Ceramics International* 40, 16549-16555.
- Yoo, J.Y., Cho, C.K., Shon, I.J., Lee, and K.T., 2011. Preparation of Porous Ni-YSZ Cermet Anodes for Solid Oxide Fuel Cell by High Frequency Induction Heated Sintering. *Materials Letters* 65, 2066-2069.