

PROSES PEMBUATAN LANTHANUM DOPED CERIA DENGAN METODE BALL MILLING

*M. Faesal Febriandyono¹, Sulisty², Jarot Raharjo²

¹Mahasiswa Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

²Dosen Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

Jl. Prof. Sudharto, SH., Tembalang-Semarang 50275, Telp. +6285800267077

*E-mail: febrifaesal26@gmail.com

Abstrak

Jumlah CO₂ yang semakin banyak mengakibatkan *global warming* yang berdampak pada perubahan iklim, sehingga perlu adanya pengembangan energi baru dan terbarukan konversi energi (EBTKE) salah satunya *fuel cell*. *Fuel cell* (sel bahan bakar) merupakan peralatan elektrokimia yang mengubah bahan bakar gas menjadi listrik secara langsung. Pemanfaatan material *lanthanum doped ceria* (LDC) sebagai elektrolit SOFC saat ini cukup berkembang. Pembuatan LDC menggunakan material *lanthanum oxide* dan *ceria oxide* yang di campurkan dengan *ball milling* selama 10 jam dengan kecepatan 300 rpm. Material *lanthanum doped ceria* dikalsinasi pada suhu 1350°C sehingga menghasilkan kristal yang berbentuk FCC (*face centered cubic*). Fasa yang terbentuk setelah dikalsinasi adalah CeO₂.

Kata kunci: CeO₂; Karbon Dioksida; La₂O₃; LDC; XRD

Abstract

The increasing amount of CO₂ causes global warming which has an impact on climate change, so it is necessary to develop new energy and renewable energy conversion (EBTKE), one of which is fuel cells. A fuel cell is an electrochemical device that converts natural gas into electricity directly. Utilization of lanthanum doped ceria (LDC) material as a SOFC electrolyte is currently quite developed. Making LDC using materials lanthanum oxide and ceria oxide mixed with ball milling for 10 hours at a speed of 300 rpm. Lanthanum doped material is calcined at 1350°C to produce crystals in the form of FCC (face centered cubic). The phase formed after calcination is CeO₂.

Keywords: LDC; CeO₂; La₂O₃; XRD; Carbon Oxide

1. Pendahuluan

Jumlah CO₂ yang semakin banyak mengakibatkan *global warming* yang berdampak pada perubahan iklim. Indonesia mengupayakan untuk menurunkan emisi CO₂ sebesar 29% di tahun 2030 dalam upaya pengendalian *global warming* [1]. Untuk mendukung penurunan emisi CO₂ dikembangkan teknologi pembangkit listrik yang ramah lingkungan dan konversi energy yang lebih efisien serta rendah emisi *carbon*. Dibidang konversi energi para peneliti berupaya mengembangkan teknologi *fuel cell* [2].

Fuel cell (sel bahan bakar) merupakan peralatan elektrokimia yang mengubah bahan bakar gas menjadi listrik secara langsung dan produk buangan berupa panas dan gas buang [3]. Jenis *fuel cell* yang telah dikembangkan dan dilakukan pengembangan melalui penelitian ada enam jenis [6]. Jenis yang telah dikembangkan meliputi *Alkaline Fuel Cell* (AFC), *Phosphoric Acid Fuel Cell* (PAFC), *Molten Carbonate Fuel Cell* (MCFC), *Polimerik Elektrolit Membran Fuel Cell* (PEMFC), dan *Solid Oxide Fuel Cell* (SOFC) [9].

Secara umum komponen utama pada SOFC terdiri dari anoda, elektrolit, dan katoda. Material anoda dan katoda harus memiliki porositas sebesar 20-40% yang berfungsi untuk menyalurkan gas yang lewat pada komponen anoda dan katoda. Komponen elektrolit adalah media yang berfungsi penghantar ion, baik ion positif maupun ion negative [10].

Pada SOFC material yang digunakan pada umumnya adalah material keramik. Material keramik ini tersusun dari material logam dan non logam yang biasanya membentuk oksida. Persyaratan elektrolit pada SOFC harus mampu menghantarkan ion negative oksigen dari katoda menuju anoda sehingga perjalanan listasan listrik dapat berlangsung dengan baik [13]. Persyaratan yang lain dari elektrolit adalah tidak boleh menghantarkan elektron, stabil pada operasi temperature tinggi (500-1000°C) dan struktur elektrolit harus rapat.

Pemanfaatan material *lanthanum doped ceria* (LDC) saat ini cukup berkembang dan banyak dilakukan peneliti. Proses pembuatan LDC dilakukan dengan cerium yang didoping dengan lanthanum [17]. Metode yang telah dikembangkan meliputi solid state.

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui fasa yang terbentuk pada pencampuran *lanthanum oxide* dan *ceria oxide* dengan metode *ball milling* lalu dilakukan proses kalsinasi pada suhu 1250°C melalui pengujian karakterisasi menggunakan XRD.

2. Bahan dan Metode Penelitian

2.1. *Lanthanum Oxide*

Lantanum oksida adalah padatan putih yang tidak larut dalam air, tetapi larut dalam larutan asam. La_2O_3 menyerap kelembapan dari udara, mengubahnya menjadi lantanum hidroksida. *Lanthanum oxide*, juga dikenal sebagai lanthana, rumus kimia La_2O_3 , adalah senyawa anorganik yang mengandung unsur tanah jarang lantanum dan oksigen. Ini digunakan dalam beberapa bahan feroelektrik, sebagai komponen bahan optik, dan merupakan bahan baku untuk katalis tertentu [3]. *Lanthanum oxide* memiliki massa molar sebesar 325,81 g/mol dan memiliki titik leleh (*melting point*) 2.315°C [3].

2.2. *Ceria Oxide*

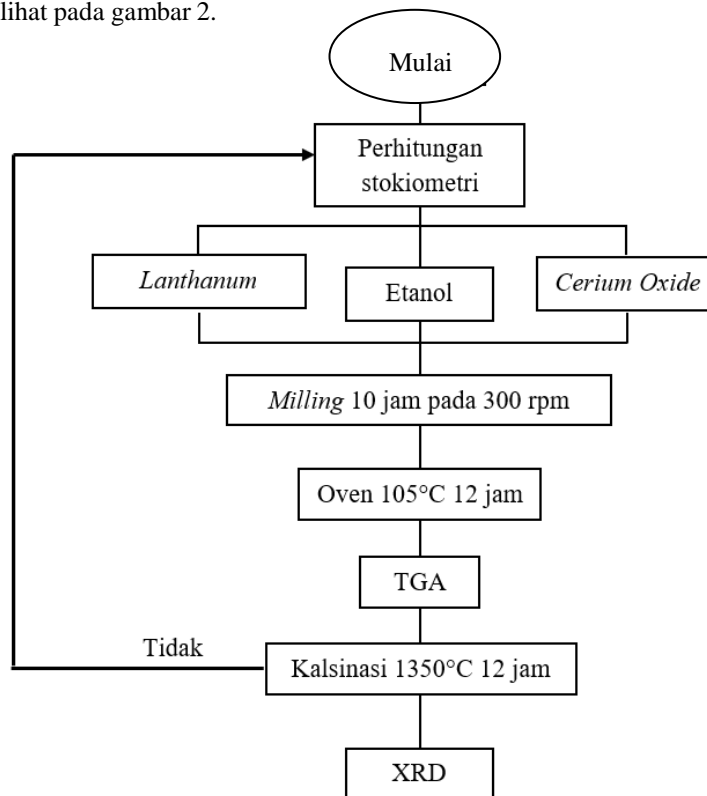
Cerium (IV) oksida atau dikenal juga sebagai *ceria oxide*, ceri dioksida, ceria, cerium oksida atau cerium dioksida, adalah oksida logam tanah jarang cerium. Cerium terjadi secara alami sebagai campuran dengan unsur tanah jarang lainnya dalam bijih utamanya *bastanezit* dan *monzait* [3]. Setelah ekstraksi ion logam dalam larutan basa, Ce dipisahkan dari campuran tersebut dengan penambahan suatu oksidator yang diikuti dengan penyesuaian pH. Langkah ini mengeksploitasi rendahnya kelarutan CeO_2 dan fakta bahwa unsur tanah jarang lainnya tidak teroksidasi. *Ceria oxide* memiliki massa molar sebesar 172, 115 g/mol dan titik lebur (*melting point*) sebesar 2.400°C [3].

2.3. *Ball Milling*

Proses *ball milling* banyak digunakan industri sebagai penggilingan material. Penggilingan ini sangat cocok untuk pencampuran serbuk dengan padatan yang mempunyai berbagai ukuran bahan karena kerja *ball milling* ini menggilas material secara kontinu sehingga material tergilang secara halus [6]. Dalam proses *ball milling* ada variable yang diperhatikan diantaranya komposisi bahan material dengan *ball milling*, jenis *ball milling* yang digunakan, kecepatan dan waktu proses dalam melakukan *ball milling*. Pada penelitian yang saya lakukan komposisi dari material dengan *ball milling* memiliki rasio perbandingan sebesar 1:10. serta jenis *ball milling* yang digunakan jenis zirconia [6].

2.4. Alur Penelitian

Penelitian dibagi ke dalam tiga tahap yaitu tahap persiapan, tahap pelaksanaan, dan tahap pengujian. Diagram alir penelitian dapat dilihat pada gambar 2.



Gambar 1. Diagram Alir Penelitian

2.5. Prosedur Penelitian

Penelitian diawali dengan mempersiapkan berbagai kebutuhan alat dan bahan, *lanthanum oxide* dan *ceria oxide* yang digunakan diambil dari lab PRMM (Pusat Riset Material Maju) BRIN. Penelitian menggunakan fasilitas yang ada di Laboratorium PRMM BRIN.

Bahan yang diperlukan dalam pembuatan *lanthanum doped ceria* (LDC) adalah sebagai berikut.

- *Lanthanum Oxide*
- *Ceria Oxide*
- Etanol

Alat yang diperlukan dalam pembuatan *lanthanum doped ceria* (LDC) adalah sebagai berikut.

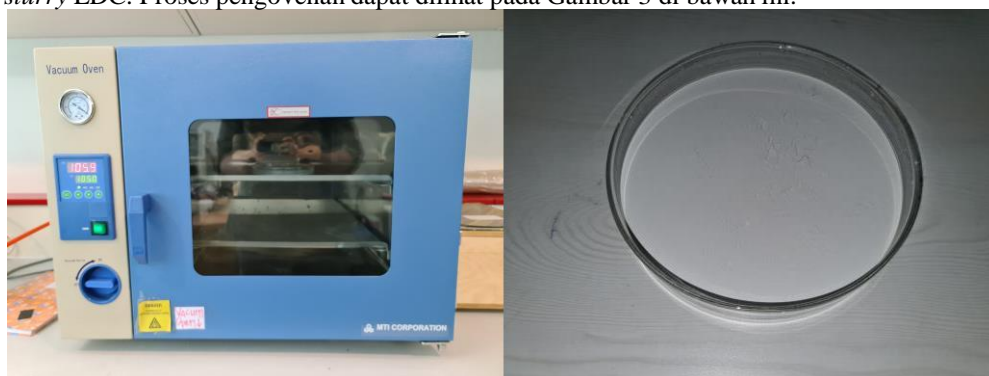
- Timbangan digital
- *Jar*
- *Zirconia Ball*
- *Furnace*
- *Planetary ball mill machine* PM 400
- Gelas ukur
- Oven

Pembuatan *lanthanum doped ceria* dimulai dengan persiapan pencampuran material *lanthanum oxide* dan *ceria oxide* ke dalam *jar* serta ditambahkan *zirconia ball*. Setelah di campur dalam *jar* lalu dimasukkan kedalam *planetary ball milling machine* PM 400. Proses preparasi pembuatan *lanthanum doped ceria* dapat dilihat pada gambar 2 dibawah ini.



Gambar 2. Preparasi *lanthanum doped ceria*

Selanjutnya dilakukan proses *milling* selama 10 jam dengan kecepatan 300 rpm. Hal ini bertujuan agar material *lanthanum oxide* dan *ceria oxide* tercampur merata. Setelah proses *milling* selesai tahap selanjutnya adalah mengovenan *slurry* LDC. Proses pengovenan dapat dilihat pada Gambar 3 di bawah ini.



Gambar 3. Pengovenan *slurry* LDC

Sebelum proses kalsinasi, LDC dihaluskan menggunakan mortar terlebih dahulu dilanjutkan pengujian TGA guna mencari suhu kalsinasi dari LDC. Dari hasil TGA menunjukkan bahwa LDC terbentuk pada suhu kalsinasi 1350°C. Tahap selanjutnya dilakukan proses kalsinasi pada suhu 1350°C selama 6 jam pada furnace. Gambar serbuk LDC dapat dilihat pada gambar 4 dibawah ini.



Gambar 4. *Lanthanum Doped Ceria* (LDC)

Serbuk LDC selanjutnya diuji karakterisasi *X-Ray Diffraction* (XRD) di laboratorium PRMM (Pusat Riset Material Maju) BRIN.

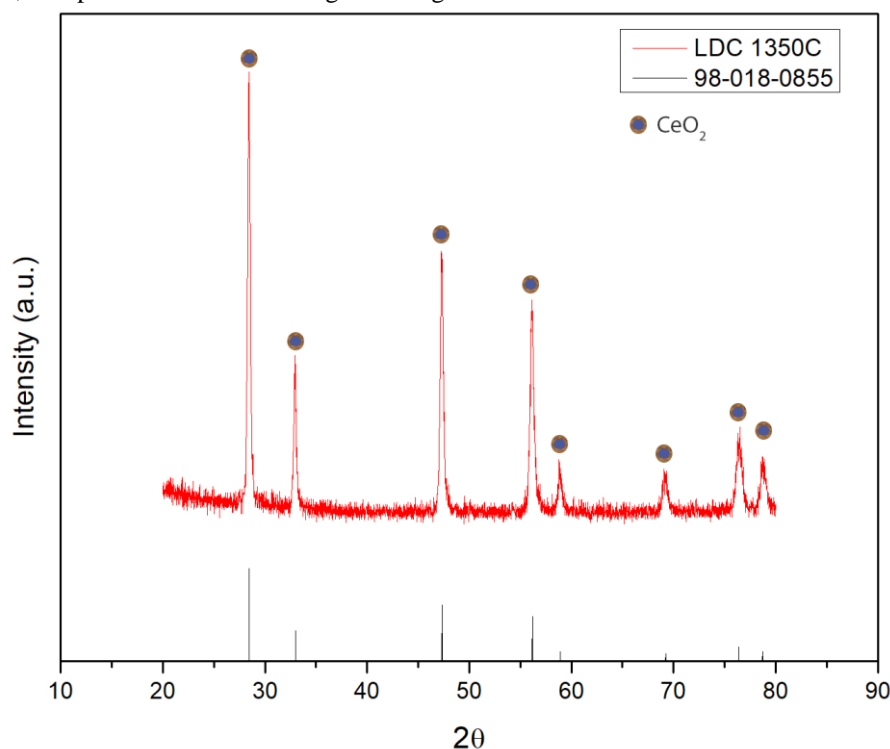
2.6. Karakterisasi XRD *Lanthanum Doped Ceria* (LDC)

X-Rays Diffraction (XRD) adalah teknik analisis cepat non destruktif yang terutama digunakan untuk identifikasi fase bahan kristal, struktur, tingkat kristalinitas material, dan dapat memberikan informasi tentang dimensi unit sel. Pada penelitian ini dilakukan uji XRD untuk mengetahui fasa yang terbentuk dan bentuk struktur kristal, apakah silika bersifat amorf atau kristalin.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1. Hasil Pengujian *X-Ray Diffraction* (XRD)

Pengujian XRD dilakukan di BRIN Lab PRMM menggunakan SHIMADZU XRD-7000 dengan tegangan 30 kV dan arus 30 mA, kecepatan scan sebesar 4 deg/min dengan sudut difraksi 2θ antara $10^\circ - 90^\circ$.



Gambar 5. Grafik XRD pada *lanthanum doped ceria*

Berdasarkan grafik hasil pengujian XRD pada *lanthanum doped ceria* seperti pada Gambar 5 terdapat puncak lancip yang terpusat pada posisi kisaran sudut difraksi $2\theta = 28,45^\circ$ menunjukkan bahwa LDC memiliki *single fase* [9].

Berdasarkan analisis grafik hasil XRD yang dilakukan dengan software *Hightscore Plus* menunjukkan bahwa *lanthanum doped ceria* yang dihasilkan bersifat *single fase*, fasa yang terbentuk pada LDC adalah fasa CeO_2 sesuai dengan data base dari software *Hightscore Plus* ICDD no. 98-018-0855. Dari sampel *lanthanum doped ceria* yang diuji, memiliki struktur kristal FCC (*face centered central*). [11].

4. Kesimpulan

Pada penelitian Karakterisasi *lanthanum doped ceria* (LDC), maka dapat diperoleh beberapa kesimpulan sebagai berikut.

1. Grafik hasil pengujian XRD menunjukkan proses pembuatan LDC dengan menggunakan metode *solid state* tidak memiliki pengotor sehingga menghasilkan *single fase* yaitu fasa CeO_2 yang terpusat pada sudut difraksi 2 theta = $28,45^\circ$. Pada LDC memiliki bentuk kristal berupa FCC (*face centered central*) (ICDD no. 98-018-0855).

5. Daftar Pustaka

- [1] Abdalla, A. M., Hossain, S., Azad, A. T., Petra, P. M. I., Begum, F., Eriksson, S. G., & Azad, A. K. (2018). Nanomaterials for solid oxide fuel cells: A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 82(February), 353–368. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2017.09.046>
- [2] Abdalla, A. M., Hossain, S., Petra, P. M. I., Savaniu, C. D., Irvine, J. T. S., & Azad, A. K. (2017). Novel layered perovskite $\text{SmBaMn}_2\text{O}_5+\delta$ for SOFCs anode material. *Materials Letters*, 204, 129–132. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2017.06.029>
- [3] Ali, M. S. A., Muchtar, A., Mah, J. C. W., Raharjo, J., & Khaerudini, D. S. (2021). Effect of open pore and pore interconnectivity in the Ni-SDC cermet anode microstructure on the performance of solid oxide fuel cells. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 1195(1), 012042. <https://doi.org/10.1088/1757-899x/1195/1/012042>
- [4] Ali, S. A. M., Muchtar, A., Raharjo, J., & Khaerudini, D. S. (2022). A Review on the Process-Structure-Performance of Lanthanum Strontium Cobalt Ferrite Oxide for Solid Oxide Fuel Cells Cathodes. *International Journal of Integrated Engineering*, 14(2), 121–137. <https://doi.org/10.30880/ijie.2022.14.02.017>
- [5] Anwar, M., Muhammed Ali, S. A., Muchtar, A., & Somalu, M. R. (2019). Synthesis and characterization of M-doped ceria-ternary carbonate composite electrolytes (M = erbium, lanthanum and strontium) for low-temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Alloys and Compounds*, 775, 571–580. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.10.076>
- [6] Aydin, F., Demir, I., & Mat, M. D. (2014). Effect of grinding time of synthesized gadolinium doped ceria (GDC10) powders on the performance of solid oxide fuel cell. *Engineering Science and Technology, an International Journal*, 17(1), 25–29. <https://doi.org/10.1016/j.jestch.2014.02.003>
- [7] Berges, C., Wain, A., Andújar, R., Naranjo, J. A., Gallego, A., Nieto, E., Herranz, G., & Campana, R. (2021). Fused filament fabrication for anode supported SOFC development: Towards advanced, scalable and cost-competitive energetic systems. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(51), 26174–26184. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.02.097>
- [8] Choo Thye Foo, Julie Andrianny Murshidi, Siti Mariam Mohamad, Nurazila Mat Zali, & Che Seman Mahmood. (2013). Effect of Impact Milling and Ball Milling on Microstructure of Lead Titanate Powders Synthesized by Solid-State Reaction. *Journal of Materials Science and Engineering B*, 3(9). <https://doi.org/10.17265/2161-6221/2013.09.003>
- [9] De Marco, V., Iannaci, A., Rashid, S., & Sglavo, V. M. (2017). Effect of anode thickness and Cu content on consolidation and performance of planar copper-based anode-supported SOFC. *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(17), 12543–12550. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2017.03.221>
- [10] Deng, B., Huang, W., & Jian, Q. (2023). An open-cathode PEMFC efficiency optimization strategy based on exergy analysis and data-driven modeling. *Energy*, 264(June 2022), 126148. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2022.126148>
- [11] Fan, L., Tu, Z., & Chan, S. H. (2021). Recent development of hydrogen and fuel cell technologies: A

- review. *Energy Reports*, 7(xxxx), 8421–8446. <https://doi.org/10.1016/j.egy.2021.08.003>
- [12] Fashalameh, K. M., Sadeghian, Z., & Ebrahimi, R. (2022). A high-performance planar anode-supported solid oxide fuel cell with hierarchical porous structure through slurry-based three-dimensional printing. *Journal of Alloys and Compounds*, 916, 165406. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2022.165406>
- [13] Fergus, J., Hui, R., Xianguo, L., Wilkinson, D., & Zhang, J. (2008). *Solid Oxide Fuel Cells: Materials Properties and Performance*.
- [14] Hanif, M. B., Rauf, S., Motola, M., Babar, Z. U. D., Li, C. J., & Li, C. X. (2022). Recent progress of perovskite-based electrolyte materials for solid oxide fuel cells and performance optimizing strategies for energy storage applications. *Materials Research Bulletin*, 146(October 2021), 111612. <https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2021.111612>
- [15] Hilmi, A., Yuh, C.-Y., & Farooque, M. (2014). Carbonate Fuel Cell Anode: A Review. *ECS Transactions*, 61(1), 245–253. <https://doi.org/10.1149/06101.0245ecst>
- [16] Hong, J. E., Ida, S., & Ishihara, T. (2014). Decreased sintering temperature of anode-supported solid oxide fuel cells with La-doped CeO₂ and Sr- and Mg-doped LaGaO₃ films by Co addition. *Journal of Power Sources*, 259, 282–288. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2014.02.106>
- [17] Jasinski, P., Molin, S., Gazda, M., Petrovsky, V., & Anderson, H. U. (2009). Applications of spin coating of polymer precursor and slurry suspensions for Solid Oxide Fuel Cell fabrication. *Journal of Power Sources*, 194(1), 10–15. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2008.12.054>
- [18] Jayakumar, P. K., Balasubramanian, K., & Rabindranath Tagore, G. (2011). Structure property correlation in ultrafine grained copper processed by equal channel angular processing. *Eurasian Chemico-Technological Journal*, 13(1–2), 59–65. <https://doi.org/10.18321/ectj66>
- [19] Jiang, S. P. (2012). Nanoscale and nano-structured electrodes of solid oxide fuel cells by infiltration: Advances and challenges. *International Journal of Hydrogen Energy*, 37(1), 449–470. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2011.09.067>
- [20] Kahlaoui, M., Inoubli, A., Chefi, S., Mezni, A., Kouki, A., Madani, A., & Chefi, C. (2016). Structural, chemical, and electrochemical properties of co-doped fluorite oxides Ce_{0.8}La_{0.2-x}Tl_xO_{2-δ} as electrolyte materials for solid oxide fuel cells. *International Journal of Hydrogen Energy*, 41(8), 4751–4764. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.01.044>
- [21] Kishor Kumar, M. J., & Kalathi, J. T. (2018). Low-temperature sonochemical synthesis of high dielectric Lanthanum doped Cerium oxide nanopowder. *Journal of Alloys and Compounds*, 748, 348–354. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.03.096>
- [22] Kroiß, T., Engel, U., & Merklein, M. (2013). Comprehensive approach for process modeling and optimization in cold forging considering interactions between process, tool and press. *Journal of Materials Processing Technology*, 213(7), 1118–1127. <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2012.09.004>