

PENGARUH KADAR NITROGEN DAN KARBON TIPE *CHARCOAL ACTIVE* SEBAGAI KATALIS PADA *FUEL CELL*

Vuri Ayu Setyowati¹, Eriek Wahyu Restu Widodo², Mohammad Yusuf Sulaiman³

^{1,2}Staf Pengajar Jurusan Teknik Mesin Fakultas Teknologi Industri Institut Teknologi Adhi Tama Surabaya

³Mahasiswa Jurusan Teknik Mesin Fakultas Teknologi Industri Institut Teknologi Adhi Tama Surabaya
Jl. Arief Rahman Hakim 100, Surabaya, 60117

¹Email: vuri@itats.ac.id

Naskah diterima: 1 Desember 2018 ; Naskah disetujui: 31 Desember 2018

ABSTRAK

Fuel cell merupakan sumber energi alternatif yang sedang dikembangkan pada masa sekarang, katoda merupakan salah satu komponen terpenting dalam fuel cell. Reaksi yang terjadi pada katoda memiliki kecepatan 3 kali lebih lambat dibandingkan pada anoda, sehingga katoda membutuhkan katalis untuk mempercepat reaksi. Oleh karena itu penting dilakukan inovasi katalis Fe-C-N dengan menganalisa pengaruh kadar karbon dan nitrogen terhadap sifat catalytic activity. Penelitian ini menggunakan $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ sebagai iron precursor, tipe karbon Charcoal Active, serta menggunakan nitrogen source dari urea. Komposisi kadar Carbon (CA) dan Nitrogen (N) yang digunakan adalah 0:1, 1:1, 3:1, dan 1:3. Karakterisasi sampel dilakukan menggunakan pengujian Elektrokimia, X-Ray Diffractometer (XRD), dan Scanning Electron Microscope – Energy Dispersive X-Ray (SEM – EDX). Berdasarkan analisa pengujian CV, penambahan nitrogen yang lebih banyak dapat meningkatkan luas area Cycle Voltammograms (CV) sehingga memiliki kapasitas yang lebih besar. Hal itu disebabkan karena terbentuknya senyawa baru yang lebih banyak saat penambahan kadar nitrogen setelah proses pyrolysis. Sedangkan pada analisa SEM, semakin tinggi kadar nitrogen pada katalis memiliki ukuran partikel yang lebih kecil.

Kata Kunci: Katalis fuel cell, katalis Fe-N-C, Charcoal Active.

PENDAHULUAN

Energi merupakan kebutuhan primer di zaman modern seperti saat ini. Khususnya, energi di bidang transportasi. Saat ini, hampir semua moda transportasi membutuhkan energi dari Sumber Daya Alam (SDA) yang tidak dapat diperbaharui, seperti solar dan bensin yang merupakan hasil olahan minyak bumi. Selain merupakan SDA yang tidak dapat diperbaharui, kebutuhan BBM tersebut tidak dapat seluruhnya dipenuhi dari potensi dalam negeri. Sehingga, masih dibutuhkan langkah impor BBM dari Negara lain.

Berdasarkan data PT Pertamina (Persero), untuk impor minyak mentah diperkirakan menyentuh angka 140 juta barel sepanjang 2017 atau lebih tinggi 5% dari realisasi impor 2016 sebanyak 134 juta barel. Impor minyak itu didatangkan dari beberapa negara seperti Arab Saudi 39 juta barel, Afrika 18 juta barel, Asia mencakup Malaysia, Thailand dan Brunei Darussalam dengan volume 60 juta barel dan Mediterania sebesar 32 juta barel (<http://industri.bisnis.com>). Selain itu, BBM sendiri berdampak buruk bagi lingkungan, karena produk pembakaran BBM akan menyebabkan efek rumah kaca. Hal tersebut disebabkan oleh tidak dapat

terolahnya gas produk pembakaran BBM oleh tumbuhan untuk melakukan proses fotosintesis.

Dari penjelasan di atas, dapat disimpulkan bahwa terdapat tiga permasalahan utama dalam penggunaan BBM pada moda transportasi, antara lain : 1) BBM merupakan SDA yang tidak dapat diperbaharui, (2) Kebutuhan BBM nasional tidak dapat dipenuhi dan (3) Polusi yang ditimbulkan oleh penggunaan BBM pada moda transportasi di Indonesia. Sehingga, perlu adanya suatu teknologi transportasi baru untuk mengatasi permasalahan di atas, yaitu dengan penggunaan Fuel Cell.

Permasalahan yang saat ini terjadi adalah pemanasan global dengan ditandai adanya perubahan iklim yang tidak tentu. Hal tersebut dapat disebabkan karena banyaknya polusi udara dari industri, kendaraan, maupun emisi bahan bakar. Oleh karena itu perlu dikembangkan teknologi baru yang ramah lingkungan seperti fuel cell dengan menghasilkan air sebagai produk akhir.

Fuel cell memiliki beberapa komponen yang masih perlu dikembangkan untuk menghasilkan performa yang maksimal. Fuel cell

menggunakan prinsip elektrolisis yang terjadi pada elektroda anoda dan katoda. Reaksi yang terjadi pada katoda merupakan reaksi reduksi oksigen sedangkan reaksi yang terjadi pada anoda adalah reaksi oksidasi hidrogen.

Permasalahan yang umum terjadi pada katoda adalah reaksi berlangsung tiga kali lebih lambat dibandingkan pada anoda. Oleh karena itu perlu dilakukan studi untuk membuat material baru yang dapat mempercepat reaksi reduksi oksigen yaitu menggunakan katalis pada sisi katoda dengan menganalisa pengaruh kadar karbon tipe Charcoal Active dan nitrogen terhadap sifat *catalytic activity*.

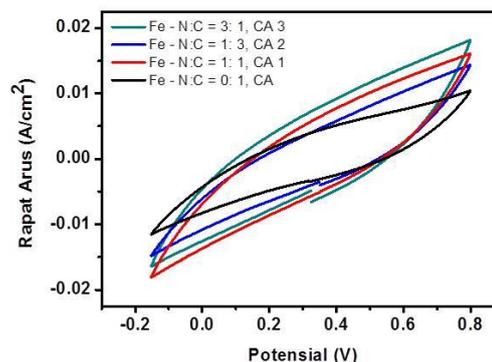
METODOLOGI

Material yang digunakan adalah senyawa menggunakan $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ sebagai iron precursor, tipe karbon Charcoal Active, serta menggunakan nitrogen source dari urea. Komposisi kadar Nitrogen (N) dan Carbon (CA) yang digunakan adalah 0:1, 1:1, 3:1, dan 1:3. Proses fabrikasi katalis dilakukan beberapa tahap, tahap pertama dilakukan penimbangan masing-masing jumlah karbon dan melamin yang akan dicampurkan. Pencampuran pertama antara karbon dan melamin bertujuan untuk terbentuk adanya ikatan antara unsur C dan N. Pencampuran tahap kedua dilakukan dengan melarutkan senyawa $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ menggunakan pelarut ethanol. Kemudian memasukkan campuran karbon dan melamin dan dilakukan stirrer selama 30 menit. Evaporasi dilakukan menggunakan mesin evaporator untuk menghilangkan pelarut pada campuran Fe/C/N sehingga terbentuk produk berupa serbuk. Pada tahapan selanjutnya sampel dengan variasi karbon dilakukan proses pyrolysis dengan tiga variabel temperatur. Sampel tanpa pyrolysis juga dilakukan untuk membandingkan efek proses ini. Karakterisasi sampel dilakukan menggunakan pengujian Cyclic Voltammetry (CV), X-Ray Diffractometer (XRD), dan Scanning Electron Microscope – Energy Dispersive X-Ray (SEM – EDX).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil Pengujian CV

Berdasarkan Gambar 1 terlihat perbedaan luasan kurva yang signifikan dari Katalis Fe-N-C dengan karbon menggunakan Charcoal Active yang dilakukan pyrolysis pada temperatur 700°C . Semakin besar luasan kurva maka kapasitas yang dihasilkan dari katalis akan semakin baik [1]. Berdasarkan pengujian CV dapat diketahui bahwa karbon jenis Charcoal Active tidak menunjukkan adanya puncak reduksi dan oksidasi.

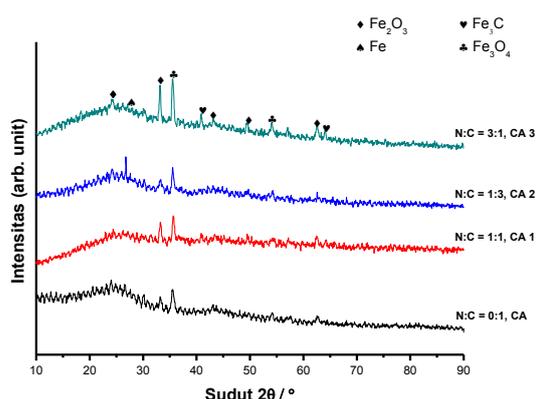


Gambar 1 Hasil Cyclic Voltammetry (CV) pada komposisi CA dan N

Reaksi elektrokimia yang terjadi pada fuel cell adalah reaksi reduksi dan oksidasi. Kecepatan reaksi pada katoda tiga kali lebih lambat dibandingkan pada anoda. Reaksi reduksi terjadi pada sisi katoda sedangkan reaksi oksidasi terjadi pada sisi anoda. Adanya keberadaan reaksi reduksi dan oksidasi dapat ditandai dengan adanya puncak yang terbentuk dari hasil pengujian CV. Pada katalis ini tidak dapat diamati puncak secara jelas.

Hasil Pengujian XRD

Karakterisasi senyawa hasil sintesis menggunakan instrument XRD dengan range sudut $2\theta = 10^\circ - 90^\circ$ dan panjang gelombang sebesar 1.54060 \AA . Pengujian dilakukan dengan mengambil sampel hasil sintesis berdasarkan perbedaan massa karbon dan komposisi nitrogen setelah dilakukan proses pyrolysis. Hasil analisa XRD pada berbagai konsentrasi katalis disajikan pada Gambar 2. Dari hasil dapat dilihat bahwa secara umum semua sampel mempertahankan struktur amorphous dari karbon aktif sebagai support pertumbuhan nanokarbon. Setiap sampel terdapat puncak pada $26,7^\circ$ yang menunjukkan struktur karbon C (002) (Han, Jung et al., 2014). Puncak pada 33° , 40° , 49° , dan 64° yang menunjukkan struktur Fe_2O_3 (Maghemite). Sementara itu, puncak Fe teramati pada 30° (220), $35,3^\circ$ (311), $57,7^\circ$ (422), dan $62,4^\circ$ (440) [2]. Kurva XRD pada Gambar 2 menunjukkan puncak melebar pada 23° - 30° yang menunjukkan struktur karbon amorphous yang umum ditemui pada karbon aktif [3].



Gambar 2 Kurva XRD pada katalis dengan Variasi Komposisi CA dan N

Perbedaan komposisi katalis menyebabkan senyawa yang terbentuk setelah pyrolysis juga berbeda. Katalis tanpa penambahan nitrogen paling banyak memiliki senyawa baru yang lebih banyak. Sampel CA 3 memiliki senyawa Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , dan Fe_3C . Senyawa Fe ini berpengaruh untuk meningkatkan performa katalis [4].

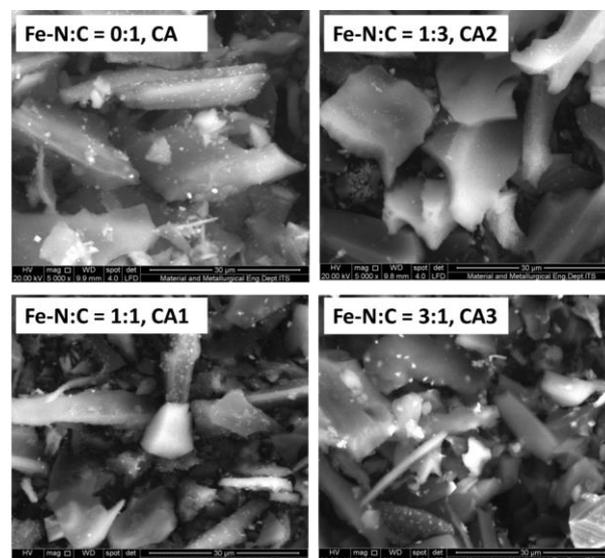
Hasil Pengujian SEM

Permukaan serbuk katalis Fe-N-C dapat dilihat menggunakan Scanning Electron Microscopy (SEM). Hal ini bertujuan untuk mengetahui tingkat dispersi partikel partikel pada serbuk katalis, dimana katalis yang memiliki tingkat dispersi tinggi akan memiliki kinerja yang lebih baik. Sampel yang dianalisis menggunakan SEM-EDAX adalah Fe-N-C dengan berbagai rasio kandungan charcoal active dan nitrogen diantaranya variasi karbon memiliki rasio N:C = 0:1, 1:3, 1:1, dan 3:1. Morfologi dan topografi permukaan katalis dilihat menggunakan SEM pada perbesaran 5000x.

Analisis katalis pada Gambar 3 menunjukkan perbedaan yang signifikan. Adanya aglomerasi putih menandakan bahwa unsur N telah terdistribusi dalam katalis. Semakin tinggi unsur N digunakan, maka aglomerasi kecil putih yang ada pada permukaan katalis juga semakin banyak dan merata setelah dilakukan proses pyrolysis. Pada rasio N:C = 1:3, tidak terdapat unsur N yang ditunjukkan dengan adanya partikel carbon saja. Pada penggunaan rasio N:C = 3:1, unsur N lebih terdistribusi dan ukuran partikel karbon lebih kecil dibandingkan dengan katalis dengan kandungan carbon yang lebih tinggi.

Bentuk morfologi yang dihasilkan adalah bentuk nanowire dengan ukuran yang berbeda-beda tiap variasi karbon dan komposisi nitrogennya. Sebuah partikel dikatakan berbentuk nanowire apabila memiliki diameter kurang dari 10 μm sampai ratusan nanometer dengan panjang sampai orde mikrometer. Bisa dilihat bahwa temperatur pyrolysis 700°C maka ukuran diameter yang dihasilkan pun semakin kecil. Dengan

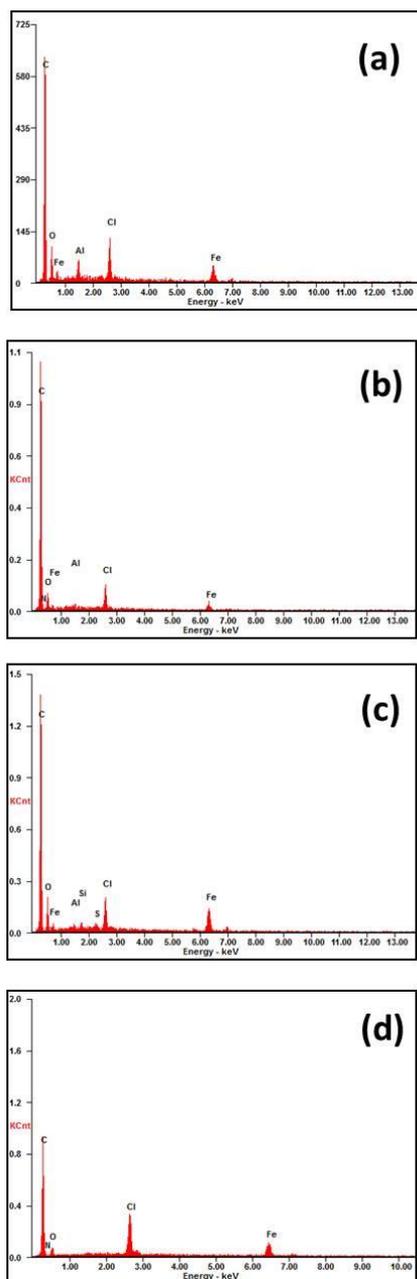
mengcilnya ukuran diameter pada tiap partikel, maka akan berpengaruh pada luas permukaannya yang semakin besar.



Gambar 3 Pengamatan SEM pada katalis dengan Variasi Komposisi CA dan N

Hasil Pengujian EDX

Keberadaan katalis besi juga dapat diamati dari hasil analisa komposisi di permukaan serbuk Fe-N-C dengan menggunakan EDX yang disajikan pada Tabel 1. Dapat dilihat bahwa seiring kenaikan jumlah katalis yang digunakan, terdapat peningkatan jumlah atom besi dan oksigen di permukaan sampel. Akan tetapi terdapat penyimpangan pada sampel yaitu munculnya unsur-unsur lain yang terdeteksi setelah dilakukan proses pyrolysis. Penyimpangan ini dapat diakibatkan oleh tidak terdistribusinya katalis secara merata di seluruh permukaan serbuk katalis Fe-N-C. Hal ini diakibatkan analisa EDX bersifat lokal, yaitu hanya pada satu posisi yang dianalisis. Hal menarik lain yang teramati adalah peningkatan jumlah atom oksigen yang cukup signifikan, bahkan lebih besar jika dibandingkan dengan rasio yang lain, yaitu 3:1. Sebagian atom oksigen bereaksi dengan permukaan karbon, sehingga terbentuk gugus-gugus fungsi di permukaan karbon aktif.



Gambar 4 Komposisi dari permukaan serbuk katalis Fe-N-C Charcoal Active (a) rasio N:C = 1:1, (b) rasio N:C = 1:3, (c) rasio N:C = 3:1, dan (d) rasio N:C = 0:1

Tabel 1 Hasil karakterisasi EDX pada variasi N:C dengan Charcoal Active

Rasio N:C	Unsur (Wt%)							
	C	N	Fe	O	Al	Cl	S	Si
1:1	64,64	-	10,16	16,67	02,51	06,01	-	-
1:3	72,79	02,14	05,66	12,94	00,83	05,64	-	-
3:1	62,50	-	16,05	14,61	00,53	05,04	00,63	00,63
0:1	66,03	01,74	13,44	08,44	-	10,35	-	-

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil pegujian dan analisa data yang dilakukan maka dapat disimpulkan bahwa penggunaan

karbon jenis Charcoal Active dengan kandungan nitrogen yang paling banyak (Fe-N:CA = 3:1) memiliki luasan Cyclic Voltammetry (CV) paling besar. Hal ini karena semakin banyak gugus fungsional nitrogen yang terdapat pada permukaan karbon CA setelah proses pyrolysis. Hal itu dapat dibuktikan dengan lebih banyaknya spot putih pada katalis Fe-N:CA = 3:1 yang teridentifikasi sebagai nitrogen. Adanya pembentukan senyawa Fe pada katalis lebih banyak dibandingkan dengan komposisi yang lainnya. Adapun senyawa Fe yang terbentuk di antaranya adalah Fe, Fe₂O₃, Fe₃C, dan Fe₃O₄.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didanai oleh Kementerian Riset dan Teknologi (Pendidikan Tinggi Indonesia) (120 / SP2H / LT / DRPM / 2018) sebagai penelitian untuk skema penelitian kolaborasi. Penulis pertama juga mengucapkan terima kasih untuk penggunaan laboratorium di Jurusan Teknik Material dan Metalurgi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)..

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Pérez-Alonso F, Salam MA, Herranz T, de La Fuente JG, Al-Thabaiti S, Basahel S, Peña M, Fierro J, Rojas S (2013) Effect of carbon nanotube diameter for the synthesis of Fe/N/multiwall carbon nanotubes and repercussions for the oxygen reduction reaction. Journal of power sources 240:494-502
- [2] Kwon JH, Wilson LD, Sammynaiken R (2014) Synthesis and characterization of magnetite and activated carbon binary composites. Synthetic metals 197:8-17
- [3] Shi H, Reimers J, Dahn J (1993) Structure-refinement program for disordered carbons. Journal of applied crystallography 26 (6):827-836
- [4] Peng H, Mo Z, Liao S, Liang H, Yang L, Luo F, Song H, Zhong Y, Zhang B (2013) High Performance Fe- and N- Doped Carbon Catalyst with Graphene Structure for Oxygen Reduction. Sci Rep 3. doi:10.1038/srep01765
- [5] _____ (2013). Supplementary Information. <http://www.nature.com/srep/2013/130503/srep01765/abs/srep01765.html#supplementary-information>