

KONDUKTIVITAS IONIK KOMPOSIT ELEKTROLIT SAMARIUM TERDOPING CERIUM-(Li/Na)₂CO₃ UNTUK SOLID OXIDE FUEL CELL BERSUHU RENDAH

Jarot Raharjo

Pusat Teknologi Material (PTM)-BPPT
Gedung II BPPT Lantai 22, Jl. M.H. Thamrin No. 8, Jakarta 10340
e-mail: jarot.raharjo@bppt.go.id

Diterima: 4 Juli 2012 Diperbaiki: 17 Desember 2012 Disetujui: 13 Februari 2013

ABSTRAK

KONDUKTIVITAS IONIK KOMPOSIT ELEKTROLIT SAMARIUM TERDOPING CERIUM-(Li/Na)₂CO₃ UNTUK SOLID OXIDE FUEL CELL BERSUHU RENDAH. Penelitian ini menguji dan menganalisis konduktivitas ionik elektrolit Samarium Doped Cerium (SDC)-(Li/Na)₂CO₃ pada variasi kandungan karbonat dan suhu untuk aplikasi Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) bersuhu rendah. Pelet elektrolit dibuat dengan metode *pressureless sintering*. Komposisi elektrolit yang digunakan adalah 80 % berat SDC dengan 20 % berat (Li/Na)₂CO₃ dan 70 % berat SDC dengan 30 % berat (Li/Na)₂CO₃, masing-masing dinamakan SDC8020 dan SDC7030. X-Ray Diffractometer (XRD) digunakan untuk menentukan struktur dan parameter kristal yang dihasilkan. Struktur mikro serbuk yang dihasilkan dikarakterisasi menggunakan Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM). Analisis Thermo Gravimetric Analysis (TGA) dilakukan pada rentang suhu 30 °C hingga 800 °C untuk menentukan sifat panas bahan. Konduktivitas sel elektrolit diukur menggunakan Impedance Spectroscopy pada rentang suhu 500 °C hingga 650 °C. Pada penelitian ini, serbuk SDC berukuran nano partikel dengan ukuran kristal 36 nm hingga 76 nm dihasilkan dengan metode *sol gel*. Sel elektrolit dengan metode *pressureless sintering* menghasilkan nilai kekonduksian ion yang tinggi yaitu rentang 1,74 x 10⁻² hingga 1,72 x 10⁻¹ S/cm (500 °C hingga 650 °C) dan 4,56 x 10⁻² hingga 5,87 x 10⁻¹ S/cm (500 °C hingga 650 °C), masing-masing untuk elektrolit SDC8020 dan SDC7030. Penelitian ini memberikan satu sumbangan penting terhadap metode pembuatan elektrolit SOFC (LT SOFC) yang lebih murah dan berpotensi diaplikasikan untuk produksi massal untuk aplikasi SOFC bersuhu rendah.

Kata kunci: Konduktivitas ion, SDC-(Li/Na)₂CO₃, Sintering tanpa tekanan, LT SOFC

ABSTRACT

IONIC CONDUCTIVITY OF SAMARIUM DOPED CERIUM-(Li/Na)₂CO₃ ELECTROLYTE COMPOSITE FOR LOW TEMPERATURE SOLID OXIDE FUEL CELL. This research investigated ionic conductivity of SDC-(Li/Na)₂CO₃ electrolyte for Low Temperature Solid Oxide Fuel Cell (SOFC). The manufacturing method of the single cell by pressureless sintering was studied. This method has the potential to replace the more expensive hot pressing technique that has been recently used for the manufacturing of the SDC-carbonate electrolyte. The composition of the electrolyte used in this study were a mixture of 80 wt.% SDC-20 wt.% (Li/Na)₂CO₃ and 70 wt.% SDC-30 wt.% (Li/Na)₂CO₃, namely SDC8020 and SDC7030 respectively. The X-Ray Diffractometer (XRD) is used in material characterization for determining the structure and crystallite size of the powders. The microstructure of the powders and pellets is determined using Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM). Thermo Gravimetric Analysis (TGA) was conducted to determine thermal properties of materials. Conductivity analysis of the electrolyte cells was conducted using an impedance spectroscopy at the temperature range of 500 °C - 650 °C. SDC nano powders with crystallite size of 36-76nm was produced by sol gel method. The electrolyte cells was successfully produced by pressureless sintering method. High ionic conductivity were achieved at 1.74 x 10⁻² - 1.72 x 10⁻¹ S/cm (500 °C - 650 °C) and 4.56 x 10⁻² - 5.87 x 10⁻¹ S/cm (500 °C - 650 °C), for SDC8020 and SDC7030 respectively. This study provides an important contribution to the method of manufacturing of the SOFC that is potentially cost effective and applicable to mass production.

Keywords: Ionic conductivity, SDC-(Li/Na)₂CO₃, Pressureless sintering, LT SOFC

PENDAHULUAN

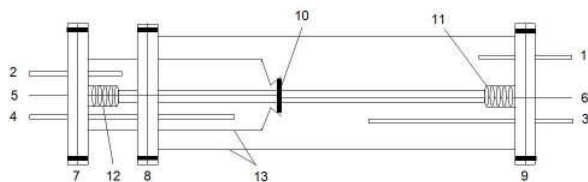
Ada beberapa alasan untuk menurunkan suhu operasi *Solid Oxide Fuel Cell (SOFC)* dari suhu tradisional (800 °C hingga 1000 °C) ke suhu yang lebih rendah (500 °C hingga 600 °C). Jika suhu operasi dapat diturunkan ke dalam rentang suhu rendah ini, maka efek panas akan berkurang, bahan perekat bukan keramik yang mahal dapat digunakan dan baja tahan karat dapat dengan mudah digabungkan. Biaya pembuatan dan daya tahan *SOFC* adalah dua hal yang sangat penting dalam memproduksi masal. Oleh karena itu, penurunan biaya pembuatan dan peningkatan ketahanan sistem adalah penting dalam mengembangkan *SOFC*.

Komposit elektrolit *SDC*-karbonat adalah bahan komposit yang digunakan untuk membantu mengurangi suhu operasi sistem. Sistem elektrolit ini telah menunjukkan peningkatan konduktivitas dan daya yang dihasilkan yang sebelumnya tidak dapat dicapai oleh sistem *SOFC* tradisional.

Namun, pada saat ini metode umum yang digunakan untuk menghasilkan elektrolit yang digunakan dalam sistem *Low Temperature Solid Oxide Fuel Cell (LT SOFC)* adalah menggunakan metode tekanan panas (*hot press*) [1-3]. Metode tekanan panas adalah relatif mahal dan tidak sesuai untuk produksi masal. Selain itu, metode ini tidak bisa digunakan untuk pembuatan film tipis. Adapun *sintering* tanpa tekanan (*pressureless sintering*) merupakan proses yang mampu memberikan pengurangan biaya produksi dan lebih sesuai untuk produksi secara masal serta memungkinkan produksi film tipis. Metode ini belum berhasil dicapai untuk sistem *LT SOFC*, oleh karena itu dilakukan kajian pada penelitian ini. Sebagai tolok ukur keberhasilan, hasil pengukuran konduktivitas ion pada sistem elektrolit *LT SOFC* hasil *sintering* tanpa tekanan akan dibandingkan dengan metode tekanan panas yang dihasilkan peneliti sebelumnya [4].

METODE PERCOBAAN

Bahan elektrolit *Samarium Doped Cerium (SDC)* dihasilkan dengan metode sol-gel. Serbuk *SDC* berukuran nano partikel yang dihasilkan kemudian dicampur dengan



Gambar 1. Skema pengujian elektrokimia untuk pengukuran konduktivitas ion sel elektrolit.

- 1,2 = Gas keluar
- 3,4 = Gas masuk
- 5,6 = Kabel platinum
- 7,8,9 = Plug aluminium
- 10 = Sampel sel elektrolit LT-SOFC
- 11,12 = Spring
- 13 = Quartz

karbonat (67%Li/ 33%Na)₂CO₃ pada variasi komposisi (20 %berat dan 30 %berat) dengan suhu kalsin 680 °C, menghasilkan komposit elektrolit *SDC*-(67%Li/ 33%Na)₂CO₃. Karakterisasi dilakukan terhadap serbuk komposit elektrolit. Karakterisasi yang dilakukan meliputi *X-Ray Diffraction (XRD)*, *Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM)* dan *Thermo Gravimetric Analysis/Differential Thermal Analysis (TGA/DTA)*.

Selanjutnya sel elektrolit dihasilkan menggunakan metode *sintering* tanpa tekanan. Parameter *sintering* tanpa tekanan yang digunakan adalah tekanan mampatan 200 Mpa dan suhu *sintering* 600 °C. Sel elektrolit kemudian dilapisi dengan perak pada kedua sisi sebagai penghantar arus. Pada akhirnya, konduktivitas sel elektrolit diukur dengan menggunakan *impedance spectroscopy* dengan tempat sampel pengujian yang dirancang secara khusus seperti pada Gambar 1.

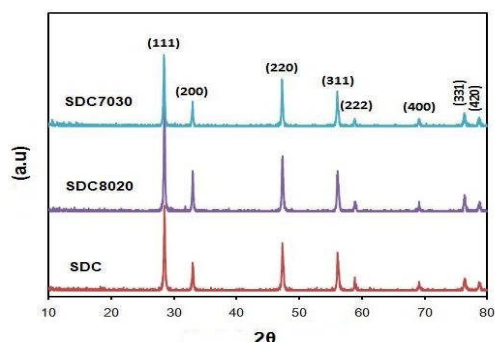
HASIL DAN PEMBAHASAN

Bagian ini dibahas pembuatan dan karakterisasi serbuk komposit elektrolit *Samarium Doped Cerium (SDC)*-(Li/Na)₂CO₃. Serbuk komposit elektrolit adalah campuran serbuk *SDC* dengan berbagai kandungan bikarbonat (67 % mol Li₂CO₃ dan 33 % mol Na₂CO₃) sebanyak 20 %berat dan 30 %berat, masing-masing dinamakan *SDC8020* dan *SDC7030*. Selanjutnya untuk proses karakterisasi serbuk dilakukan beberapa karakterisasi bahan diantaranya adalah analisis difraksi sinar-X, analisis mikroskop elektron, analisis panas dan pengujian konduktivitas ionik.

Analisis Difraksi Sinar-X

Struktur kristal dan kemurnian fasa komposit elektrolit *SDC*-(Li/Na)₂CO₃ diuji menggunakan *X-Ray Diffraction (XRD)*. Difraktometer *XRD* serbuk komposit elektrolit dicatat pada suhu ruangan menggunakan mesin *XRD (Shimadzu XRD-6000)* dengan sinar Cu K α ($\lambda=1,5418\text{\AA}$), 40kV dan 40mA dengan sudut difraksi 2 θ pada rentang 10° hingga 80°.

Gambar 2 menunjukkan difraktometer *XRD* untuk serbuk *SDC* murni dan komposit elektrolit *SDC8020* dan *SDC7030*. Serbuk *SDC* murni diuji sebagai pembanding.



Gambar 2. SDifraktometer *XRD* serbuk *SDC* murni dan komposit elektrolit *SDC8020* dan *SDC7030*.

Dari gambar terlihat tidak terdapat fasa tunggal Sm₂O₃, dimana menunjukkan fasa tersebut telah terdoping ke dalam cerium. Struktur kristal yang dihasilkan merupakan fluorit cerium jenis kristal kubus berpusat muka dengan grup ruang Fm3m (JCPDS No.43-1002), dimana struktur kristal ini bisa memberikan pergerakan ion yang baik dalam elektrolit [5, 6].

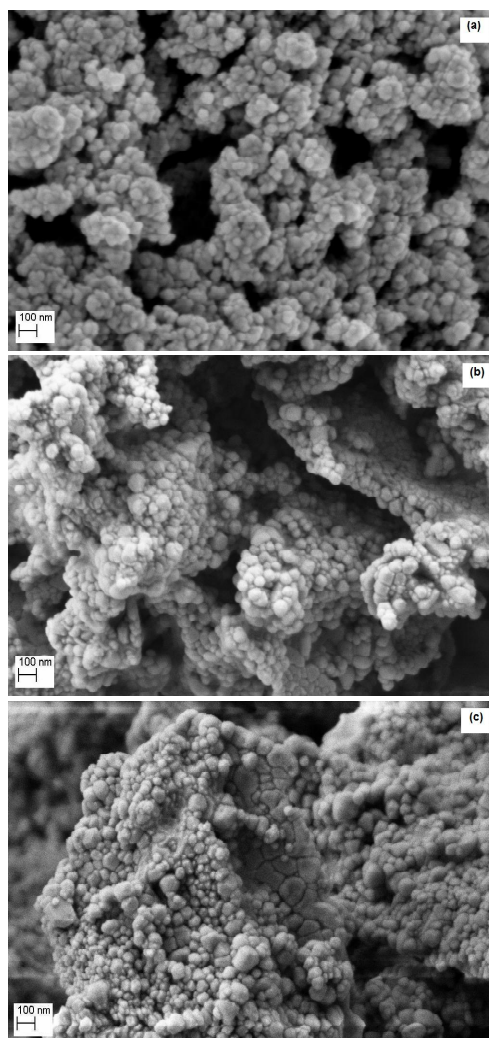
Komposit elektrolit SDC-(Li/Na)₂CO₃ adalah sejenis komposit cerium yang mengandung fasa leburan karbonat (Li/Na)₂CO₃. Difraktogram XRD hanya memperlihatkan fasa SDC, dimana leburan karbonat tidak terlihat pada difraktogram XRD. Kandungan karbonat dalam komposit didapatkan tidak mengubah struktur fasa SDC. Difraktogram XRD dari SDC murni dan komposit elektrolit memperlihatkan posisi puncak yang sama yang bermaksud bahwa struktur fasa oksida padat tidak berubah. Tidak adanya spektrum karbonat dalam gambar difraktometer XRD menunjukkan bahwa karbonat dalam keadaan amorfous di dalam komposit elektrolit. Dalam hal ini komposit diandaikan mempunyai lapisan fasa amorf pada partikel SDC disebabkan oleh sewaktu perlakuan panas, karbonat melebur lalu membuat lapisan pada partikel SDC, seperti yang pernah dilaporkan oleh peneliti sebelumnya dengan komposisi karbonat yang berbeda masing-masing (10 % berat, 20 % berat dan 50 % berat (0,52Li/0,48Na)₂CO₃ dan 10 % berat (0,52Li/0,48Na)₂CO₃ [7,8]. Hasil yang serupa juga telah diperoleh oleh peneliti sebelumnya yang menggunakan karbonat yang berbeda-beda yaitu (Li/Na)₂CO₃, (Li/K)₂CO₃ dan (Na/K)₂CO₃ [9]. Peneliti lain membuat nano struktur SDC-Na₂CO₃ dan komposit Ce_{0,8}Sm_{0,2-x}Ca_xO_{2-δ}-Na₂CO₃ [2].

Kesimpulan analisis XRD bahwa komposit elektrolit terdiri dari dua fasa yang berbeda yaitu SDC dan karbonat. Pola difraksi Sinar-X menunjukkan tidak menemukan difraktogram XRD yang baru pada komposit, yang memperlihatkan bahwa tidak ada reaksi kimia atau senyawa baru antara fasa SDC dan karbonat.

Analisis Field Emission Scanning Electron Microscope

Morfologi serbuk SDC murni dan komposit elektrolit SDC-(Li/Na)₂CO₃ dengan berbagai kandungan karbonat telah dikarakterisasi dengan menggunakan Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM) (Zeiss Supra-55VP) dengan pembesaran sehingga 100Kx.

Gambar 3 menunjukkan strukturmikro dan taburan butiran serbuk SDC murni dan komposit elektrolit SDC8020 dan SDC7030. Serbuk SDC murni yang dihasilkan dengan metode *sol gel* dan dikalsinasi pada suhu 850 °C ditunjukkan dalam Gambar 3(a), dimana strukturmikro menunjukkan struktur bulat-bulat dengan banyak gumpalan. Hal tersebut menunjukkan banyak partikel yang halus atau berukuran nano meter lebih kecil dari 100 nm.



Gambar 3. FESEM SDC murni (a), komposit elektrolit SDC-(Li/Na)₂CO₃ dengan berbagai kandungan karbonat dalam %berat : (b) 20 % (SDC8020) dan (c) 30 % (SDC7030) dengan pembesaran 100Kx.

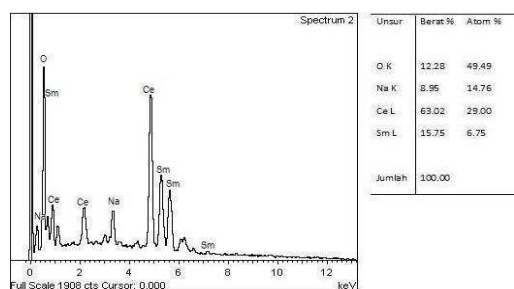
Metode sintesis yang berbeda bisa menghasilkan struktur yang berbeda. Struktur SDC yang berbeda diperoleh dalam penelitian sebelumnya dalam pembuatan serbuk SDC dengan metode proses glisin nitrat (*glycin nitrate*) yang menghasilkan struktur SDC berbentuk busa berpori dan metode endapan oksalat (*oxalate co precipitation*) yang menghasilkan struktur serbuk SDC berbentuk plat rata [10]. Gambar 3(b) dan Gambar 3(c) menunjukkan morfologi permukaan serbuk komposit elektrolit dengan suhu kalsinasi 680 °C yang memperlihatkan bahwa karbonat melebur dan membasahi serbuk cerium. Selain itu, ketika pendinginan endapan karbonat didapat membentuk campuran karbonat yang homogen melapisi permukaan serbuk cerium.

Hal ini menunjukkan bahwa permukaan partikel SDC tertutup dengan karbonat amorfous. Gambar mikrofot juga menunjukkan antarmuka partikel dapat dilihat dengan jelas. Sebagian kristal mempunyai bentuk bulatan dengan banyak penggumpalan. Penggumpalan yang dihasilkan lebih banyak daripada penggumpalan

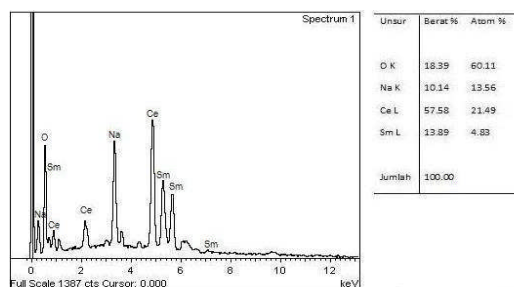
pada serbuk *SDC* murni. Hasil yang serupa telah dilaporkan peneliti sebelumnya bahwa komposit *SDC*-karbonat dengan kandungan 10 % berat hingga 35 % berat ($2\text{Li}_2\text{CO}_3 : 1\text{Na}_2\text{CO}_3$) [11]. Serbuk *SDC* yang digunakan oleh peneliti sebelumnya, dihasilkan dengan metode pengendapan oksalat dan proses glisin nitrat [11], sedangkan dalam kajian ini serbuk *SDC* dihasilkan menggunakan metode *sol gel*. Peneliti sebelumnya di dalam kajiannya juga menemukan fenomena ini [2]. Kajiannya membuat nano partikel komposit *SDC*-(Li/Na) $_2\text{CO}_3$ dengan persentase berat 4 : 1 menggunakan tiga metode yang berbeda yaitu reaksi keadaan padat, metode basah dan endapan. Fenomena ini pada kajiannya dalam sintesis nano meter komposit *SDC*- Na_2CO_3 , dimana sintesis menggunakan metode pengendapan kimia satu langkah (*one-step coprecipitation process*) [2]. Kajiannya menggunakan *Transmission Electron Microscope (TEM)* menunjukkan bahwa karbonat adalah amorfous dan melapisi permukaan partikel *SDC* dalam struktur *core-shell*. Sifat dasar amorfous adalah bisa memudahkan konduktivitas ion. Sewaktu persiapan sampel, proses perlakuan panas menyebabkan karbonat menjadi lunak atau melebur dan menguap melapisi partikel *SDC*. Hal ini menghasilkan beberapa fungsi meliputi melindungi partikel *SDC* daripada reaksi dan kestabilan pada suhu yang tinggi atau dalam atmosfer penurunan dan oksidasi, melindungi dari penurunan Ce^{4+} menjadi Ce^{3+} dan peningkatan konduktivitas [12].

Analisis Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy

Gambar 4 dan Gambar 5 menunjukkan spektrum *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)* dari masing-masing serbuk komposit elektrolit *SDC8020* dan



Gambar 4. Spektrum *EDS* serbuk komposit *SDC8020*.



Gambar 5. Spektrum *EDS* serbuk komposit *SDC7030*

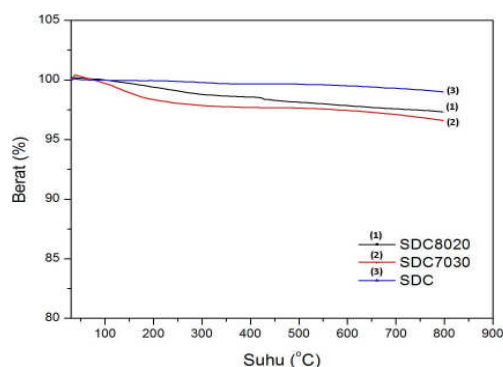
SDC7030. Kedua gambar tersebut membuktikan kehadiran karbonat dalam komposit elektrolit. Kedua gambar menunjukkan spektrum Sm, Ce, Na dan O. Spektrum unsur Litium (Li) tidak terlihat dalam gambar *EDS* karena diluar rentang yang bisa diamati oleh mesin *EDS*. Jumlah persentase berat yang diperoleh merupakan dugaan kandungan pada luas serbuk yang di analisis.

Analisis Thermal Gravimetry

Analisis massa yang hilang ketika terdapat perlakuan panas dilakukan dengan menggunakan alat ukur *Thermal Gravimetry Analysis (TGA)* model *SDT-Q600*, pada rentang suhu 30 °C hingga 800 °C.

Kestabilan fasa (Li/Na) $_2\text{CO}_3$ dalam komposit elektrolit harus diperhatikan, penguapan dan penguraian mungkin terjadi ketika suhu operasi dijalankan, yang menyebabkan penurunan kinerja *fuel cell*. Gambar 6 menunjukkan grafik *TGA* dari serbuk *SDC* murni dan komposit elektrolit *SDC8020* dan *SDC7030*. Ketiga serbuk yang diuji adalah serbuk setelah kalsinasi. Grafik *SDC* murni menunjukkan garis lurus dan relatif tidak terjadi banyak penurunan pada rentang suhu yang diselidiki. Oleh karena itu *SDC* murni menunjukkan tidak mengalami banyak perubahan berat pada rentang suhu 30 °C hingga 800 °C. Sedangkan komposit *SDC8020* dan *SDC7030*, keduanya menunjukkan sedikit kehilangan berat yang dimulai penurunan sedikit tajam pada rentang suhu permulaan hingga kurang lebih 400 °C. Hal ini karena penguapan dari air yang terserap dan Li_2CO_3 melebur ke dalam Na_2CO_3 membentuk karbonat *biner* (Li/Na) $_2\text{CO}_3$.

Pada suhu 400 °C hingga 800 °C kecenderungan semakin tinggi suhu kalsinasi semakin menurun, dimana menunjukkan adanya kehilangan berat. Namun demikian, persentase kehilangan berat tersebut cukup kecil yaitu pada rentang 2,67 % hingga 3,39 % pada suhu 800 °C. Fenomena ini sejalan dengan kajian peneliti lain [1], dimana mengkaji bahan komposit *SDC*- Na_2CO_3 pada rentang suhu kamar hingga 1.000 °C. Pada penelitiannya didapat sedikit kehilangan berat pada rentang 30 °C hingga 400 °C. Kemudian pada rentang 400 °C hingga 800 °C tidak ada kehilangan berat yang berarti. Seterusnya gambar penurunan yang tajam terjadi bermula pada suhu lebih besar 800 °C, yang berarti terdapat



Gambar 6. *TGA* dari *SDC* murni, *SDC8020* dan *SDC7030*

kehilangan berat yang banyak terjadi bermula pada suhu tersebut. Penelitiannya menggunakan karbonat tunggal Na₂CO₃, dimana penelitian ini menggunakan karbonat biner (Li/Na)₂CO₃ dan rentang pengukuran kajiannya hingga 1000 °C, sedangkan kajian ini hingga 800 °C. Faktor inilah yang menyebabkan hasil kesimpulan yang sedikit berbeda.

Kesimpulan dari analisis ini menunjukkan bahwa tidak terjadi kehilangan berat yang berarti pada rentang suhu 400 °C hingga 800 °C, dimana hanya terjadi sedikit penguapan dan penguraian pada rentang tersebut. Oleh karena itu, hasil TGA membuktikan bahwa keberadaan fasa (Li/Na)₂CO₃ masih tetap ada dalam komposit elektrolit SDC-(Li/Na)₂CO₃ pada waktu suhu operasi 500 °C hingga 650 °C.

Analisis Konduktivitas Elektrolit SDC-(Li/Na)₂CO₃

Uji konduktivitas elektrolit dilakukan pada kedua jenis komposit elektrolit SDC8020 dan SDC7030 dengan menggunakan alat Spektroskopi Impedansi (Solarton SI-1286) dan Penganalisis Rangsangan Frekuensi Tinggi (HFRA, Solarton 1255). Teknik spektroskopi impedansi merupakan teknik yang sering digunakan untuk menentukan ciri-ciri elektrokimia keramik polikristal.

Sampel elektrolit dihasilkan dengan metode sintering tanpa tekanan pada tekanan mampatan 200 MPa dan suhu sintering 600 °C selama 1 jam. Komposisi elektrolit yaitu 80 % berat SDC-20 % berat karbonat (Li/Na)₂CO₃ (SDC8020) dan 70 % berat SDC-

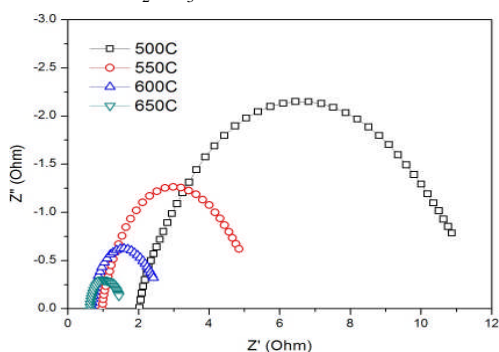
30 % berat karbonat (Li/Na)₂CO₃ (SDC7030). Analisis dijalankan pada atmosfer udara dengan menggunakan frekuensi sebesar 0,1 mHz hingga 100 kHz dan arus 100 mV. Analisis dilakukan pada suhu 500 °C hingga 650 °C dengan selang suhu sebesar 50 °C. Data spektroskopi impedansi ditunjukkan dalam Gambar 7 dan Gambar 8.

Gambar 7 dan Gambar 8 menunjukkan data spektroskopi impedansi komposit elektrolit SDC8020 dan SDC7030 pada berbagai suhu. Pada gambar spektroskopi impedansi tersebut ditunjukkan grafik lengkung setengah bulatan pada berbagai variasi suhu 500 °C, 550 °C, 600 °C dan 650 °C. Pada kedua jenis elektrolit, peningkatan suhu didapatkan lengkung yang semakin kecil. Lengkung setengah bulat pada frekuensi tinggi ini, biasanya menunjukkan pengaruh batas butiran dan dari butiran elektrolit.

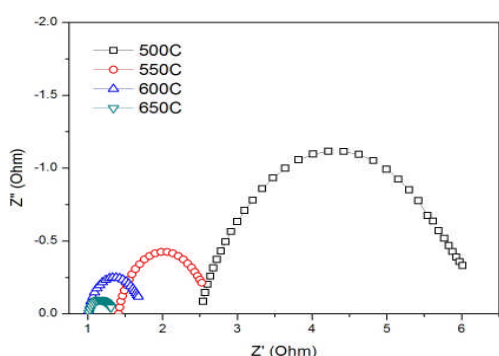
Nilai rintangan yang ditentukan dari plot grafik lengkung setengah pada frekuensi tinggi akan digunakan untuk penghitungan konduktivitas bahan elektrolit. Ketebalan sampel elektrolit kurang lebih 2 mm, luas permukaan sel 1,27 cm² dan dari analisis grafik pada Gambar 6 didapatkan rintangan yang dihasilkan pada suhu operasi 500 °C untuk elektrolit SDC8020 yaitu sebesar 3,63 Ω. Oleh karena itu, konduktivitas dapat dihitung dengan persamaan Arrhenius yaitu sebesar 4,56 x 10⁻² S/cm. Perhitungan diulang untuk suhu operasi 550 °C, 600 °C dan 650 °C serta untuk jenis elektrolit SDC7030. Elektrolit komposit SDC8020 dan SDC7030 menghasilkan konduktivitas ionik yang baik. Data konduktivitas dari kedua jenis elektrolit SDC8020 dan SDC7030 dapat ditunjukkan dalam Gambar 9.

Konduktivitas ionik dalam kajian ini adalah fungsi fraksi volume garam karbonat (Li/Na)₂CO₃. Konduktivitas ionik dalam udara meningkat dengan semakin banyaknya kandungan karbonat (Li/Na)₂CO₃. Dari perhitungan dengan persamaan Arrhenius, didapatkan konduktivitas ionik SDC8020 adalah 1,74 x 10⁻² Scm⁻¹, 3,86 x 10⁻² Scm⁻¹, 8,49 x 10⁻² Scm⁻¹ dan 1,72 x 10⁻¹ Scm⁻¹, dan konduktivitas ionik SDC7030 adalah 4,56 x 10⁻² Scm⁻¹, 1,32 x 10⁻¹ Scm⁻¹, 3,05 x 10⁻¹ Scm⁻¹ dan 5,87 x 10⁻¹ Scm⁻¹, masing-masing untuk suhu 500 °C, 550 °C, 600 °C dan 650 °C. Konduktivitas ionik paling tinggi dicapai sebesar 5,87 x 10⁻¹ Scm⁻¹ bagi elektrolit SDC7030 pada suhu 650 °C, dengan konduktivitas ionik paling sedikit yaitu 1,74 x 10⁻² Scm⁻¹ bagi elektrolit SDC8020 pada suhu 500 °C.

Kandungan karbonat dalam elektrolit memberikan pengaruh peningkatan konduktivitas ionik. Konduktivitas ionik SDC7030 (30 % berat karbonat) didapat lebih besar dari SDC8020 (20 % berat karbonat) pada rentang suhu operasi yang diselidiki. Perbedaan nilai konduktivitas ionik mungkin dikarenakan oleh perbedaan strukturmikro dan fraksi volume di antara SDC8020 dan SDC7030. Hasil penelitian ini sejalan dengan kajian peneliti sebelumnya [13], dimana menyelidiki pengaruh kandungan karbonat dalam



Gambar 7. Data spektroskopi impedansi komposit elektrolit SDC8020

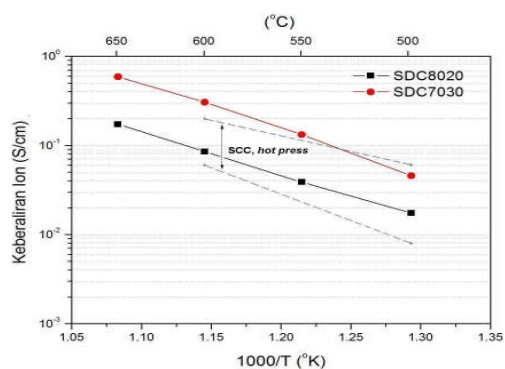


Gambar 8. Data spektroskopi impedansi komposit elektrolit SDC7030.

komposit elektrolit $SDC-(Li/K)_2CO_3$ terhadap konduktivitas ionik. Konduktivitas meningkat tajam pada kandungan karbonat 30 % dan seterusnya terjadi sedikit peningkatan. Namun demikian, penambahan karbonat diatas 30 % tidak dianjurkan karena kekuatan mekanis menjadi rendah. Kandungan karbonat semakin sedikit, nilai konduktivitas ionik mendekati nilai SDC murni. Ambang batas (*percolation threshold*) kandungan karbonat didapati pada 30 % berat karbonat. Manakala kandungan karbonat menjadi semakin sedikit di bawah *percolation threshold*, partikel karbonat terpisahkan oleh partikel SDC dan menghambat jalannya ion karbonat, sehingga konduktivitas komposit kecenderungan mengikut konduktivitas SDC . Ketika kandungan karbonat mendekati kepada *percolation threshold*, fasa karbonat menjadi kontinyu sehingga meningkatkan konduktivitas. Pada Gambar 9 ditunjukkan pula bahwa konduktivitas ionik meningkat dengan kenaikan suhu. Kecenderungan ini berlaku pada kedua jenis elektrolit $SDC8020$ dan $SDC7030$.

Garis putus-putus pada Gambar 9 menunjukkan rentang konduktivitas ionik yang dihasilkan dalam kajian [4]. Dalam kajiannya, bahan komposit elektrolit cerium karbonat padat *Solid Carbonat-Ceria Composite (SCC)* dengan metode penekanan panas (*hot press*) bagi menghasilkan pelet elektrolit. Bahan elektrolit yang dihasilkan mempunyai konduktivitas yang tinggi sebesar $0,001 Scm^{-1}$ hingga $0,2 Scm^{-1}$ pada julat suhu $400\text{ }^{\circ}C$ hingga $600\text{ }^{\circ}C$. Bahan komposit elektrolit yang digunakan dalam kajian beliau adalah menggunakan campuran Gadolinium terdoping cerium (*GDC*) dan karbonat MCO_3 ($M = Ca, Sr, Ba$). Komposit elektrolit SDC dan karbonat M_2CO_3 ($M = Li, Na, K$) dengan metode penekanan panas, dimana dihasilkan konduktivitas yang tinggi sebesar $0,01 Scm^{-1}$ hingga $1 Scm^{-1}$. Elektrolit $SDC-(2Li/1Na)_2CO_3$ yang dihasilkan dengan metode penekanan panas, dimana konduktivitas ionik yang dihasilkan yaitu $0,16 Scm^{-1}$ hingga $0,39 Scm^{-1}$ pada rentang suhu $400\text{ }^{\circ}C$ hingga $600\text{ }^{\circ}C$ [4].

Gambar 9 menunjukkan bahwa sampel komposit elektrolit $SDC8020$ dan $SDC7030$ dengan metode *sintering* tanpa tekanan, mempunyai nilai konduktivitas



Gambar 9. Perbandingan konduktivitas ionik komposit elektrolit dengan metode *sintering* tanpa tekanan yang dihasilkan dalam penelitian ini dengan komposit elektrolit karbonat-cerium dengan metode penekanan panas [4].

ionik dalam rentang dari sampel dengan metode penekanan panas [4] pada rentang suhu yang sama ($500\text{ }^{\circ}C$ hingga $600\text{ }^{\circ}C$). Dimana pada komposisi elektrolit $SDC7030$ dan suhu operasi $600\text{ }^{\circ}C$ dan $650\text{ }^{\circ}C$, didapatkan nilai konduktivitas yang lebih tinggi dari rentang sampel penekanan panas. Hal ini menunjukkan bahwa metode *sintering* tanpa tekanan ini adalah sesuai digunakan untuk pembuatan elektrolit sistem *LT SOFC cerium karbonat*. Faktor yang perlu menjadi perhatian bahwa *sintering* tanpa tekanan menjaga tingkat konduktivitas sesuai dengan elektrolit tradisional *IT SOFC*. Hal ini mempunyai keuntungan secara langsung, dimana telah diketahui bahwa elektrolit *IT SOFC* (monolitik SDC) adalah sistem yang telah dikaji dan dipelajari dengan baik dibandingkan dengan *sintering* tanpa tekanan elektrolit *LT SOFC* yang baru diuji dalam penelitian ini. Oleh karena itu, masih ada peluang pada kajian masa depan untuk meningkatkan konduktivitas dengan meningkatkan perhatian terhadap struktur mikro. Konduktivitas ionik yang dihasilkan dalam penelitian ini juga lebih banyak apabila dibandingkan dengan konduktivitas ionik SDC murni sebesar $2,9 \times 10^{-3}$ hingga $5,0 \times 10^{-3} Scm^{-1}$ pada suhu $500\text{ }^{\circ}C$ dan $3,5 \times 10^{-2}$ hingga $4,0 \times 10^{-2} Scm^{-1}$ pada suhu $700\text{ }^{\circ}C$ [15].

Peningkatan konduktivitas ionik komposit elektrolit cerium karbonat berasal dari aliran fasa *superionic* yang terjadi di kawasan antara muka di antara fasa penyusun. Konduktivitas *superionic* adalah bahan yang memungkinkan terjadinya perpindahan ion secara makroskopik melalui strukturnya yang mengarah kepada nilai konduktivitas ionik yang tinggi dalam keadaan padat. Meningkatnya konduktivitas batas butir atau fasa telah diketahui memerlukan struktur mikro yang halus dalam meningkatkan kepadatan sehingga dapat meningkatkan konduktivitas [16]. Untuk menjaga mikrostruktur yang halus tersebut, diperlukan hasil serbuk SDC yang halus dengan menjaga ukuran kristal setelah kalsinasi kurang dari 100 nm [8]. Pada kajian ini, serbuk SDC yang digunakan mempunyai ukuran kristal 59 nm . Hal ini bisa menghasilkan konduktivitas ionik yang tinggi.

Percobaan ini dapat disimpulkan bahwa konduktivitas ionik bisa ditingkatkan dengan penambahan kandungan karbonat dan menjaga serbuk SDC yang halus. Kedua faktor tersebut dapat meningkatkan kepadatan dan menghasilkan struktur mikro yang baik dan pada akhirnya memberikan konduktivitas yang tinggi. Peningkatan konduktivitas ionik komposit elektrolit $SDC-(Li/Na)_2CO_3$ mungkin dikarenakan fasa leburan karbonat dan antarmuka diantara partikel SDC dan fasa karbonat yang memberikan jalan ion yang cepat. *Sintering* tanpa tekanan menghasilkan sampel dengan kualitas yang baik, efisiensi tinggi dan biaya yang relatif murah menjadikan metode produksi ini sebagai metode yang dipilih dalam kajian ini. Metode ini juga merupakan metode baru dalam menghasilkan sel elektrolit *LT SOFC* yang berpotensi

bagi menggantikan metode penekanan panas yang relatif lebih mahal.

KESIMPULAN

Telah dihasilkan komposit elektrolit Samarium Doped Cerium (SDC) yang mengandung karbonat biner (Li₂CO₃ dan Na₂CO₃) dengan kandungan berbeda 20 %berat (SDC8020) dan 30 %berat (SDC7030). Analisis X-Ray Diffractometer (XRD), Field Emmision Scanning Electron Microscope (FESEM) dan Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS), didapatkan komposit elektrolit yang dihasilkan adalah sesuai dengan komposisi SDC-(Li/Na)₂CO₃ dan mengandung dua fasa SDC dan karbonat amorfous. Kedua jenis elektrolit mempunyai ukuran kristal yang halus lebih kecil dari 100 nm, dimana memungkinkan hasil sel yang padat dan menghasilkan konduktivitas ionik yang tinggi.

Sel elektrolit Low Temperature Solid Oxide Fuel Cell (LT SOFC) yang digunakan pada rentang suhu 500 °C hingga 650 °C telah berhasil dihasilkan dengan menggunakan metode *sintering* tanpa tekanan (*pressureless sintering*). Metode ini menghasilkan pelet dengan sifat-sifat kepadatan dan porositas yang sesuai, serta kualitas yang sangat baik. Tekanan mampatan sebesar 200 MPa dan suhu *sintering* 600 °C adalah parameter optimum untuk menghasilkan elektrolit. Konduktivitas ionik elektrolit paling banyak yaitu $5,87 \times 10^{-1} \text{ Scm}^{-1}$ dicapai oleh elektrolit SDC7030 pada suhu 650 °C, dimana konduktivitas ionik paling sedikit yaitu $1,74 \times 10^{-2} \text{ Scm}^{-1}$ dicapai oleh elektrolit SDC8020 pada suhu 500 °C. Nilai konduktivitas ionik yang tinggi diperoleh dalam kajian ini, sejalan dengan rentang nilai konduktivitas elektrolit cerium karbonat yang diperoleh dengan metode penekanan panas [4] dan lebih baik dari konduktivitas monolitik SDC. Hal ini menunjukkan bahwa elektrolit ini mempunyai potensi untuk digunakan sebagai elektrolit IT SOFC maupun LT SOFC. Kajian ini memberikan satu sumbangan penting bagi metode pembuatan sel elektrolit yang berbiaya rendah dan berpotensi diaplikasikan untuk produk masal.

DAFTAR ACUAN

- [1]. Y. MA, X. WANG, R. RAZA, M. MUHAMMED and B. ZHU, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35** (2010) 2580-2585
- [2]. R. RAZA, W. XIAODI, M. YING, L. XIANGRONG AND B. ZHU, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35** (7) (2010) 2684-2688
- [3]. B. ZHU, L. SONG, B. E. MELANDER, *Electrochemistry Communications*, **10** (2) (2008) 302-305
- [4]. B. ZHU, *Journal of Power Sources*, **93** (2001) 82-86
- [5]. B. C. H. STEELE, *Solid State Ionics*, **129**(1-4) (2000) 95-110
- [6]. W. G. WANG, M. MOGENSEN, *Solid State Ionics*, **176** (2005) 457-462
- [7]. A. BOD'EN, D. JING, L. CARINA, L. GORAN and W. Y. CHENG, *Journal of Power Sources*, **172** (2007) 520-529
- [8]. B. ZHU, *Journal of Power Sources*, **114** (2003) 1-9
- [9]. J. HUANG, R. GAO, Z. MAO and J. FENG, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35** (7) (2010) 2657-2662
- [10]. C. XIA, Y. LI, Y. TIAN, Q. LIU, Z. WANG, L. JIA, Y. ZHAO and Y. LI, *Journal of Power Sources*, **195** (2010) 3149-3154
- [11]. J. HUANG, Z. MAO, Z. LIU and C. WANG, *Journal of Power Sources*, **175** (2008) 238-243
- [12]. Z. TANG, Q. LIN, B.E. MELLANDER and B. ZHU, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35** (7) (2010) 2970-2975
- [13]. H. D. WIEMHÖFER, H. G. BREMES, U. NIGGE, *Solid State Ionics*, **175** (1-4) (2004) 93-98
- [14]. J. HUANG, L. YANG, R. GAO, Z. MAO and C. WANG, *Electrochemistry Communications*, **8** (2006) 785-789
- [15]. T. ISHIHARA, S. FUKUI, H. NISHIGUCHI and Y. TAKITA, *Solid State Ionics*, **152-153** (2002) 609-613
- [16]. B. ZHU, *International Journal of Energy Research*, **30** (2006) 895-903