



THE EFFECT OF MAGNETITE (Fe_3O_4) CATALYST FROM IRON SANDS ON DESORPTION TEMPERATURE OF MgH_2 HYDROGEN STORAGE MATERIAL*

Maulinda¹, Zulkarnain Jalil^{2,*} dan Adi Rahwanto²

¹ Program Magister Fisika, Pascasarjana Universitas Syiah Kuala, Darussalam
Banda Aceh 23111, Indonesia

² Laboratorium Fisika Material, Jurusan Fisika, FMIPA, Universitas Syiah Kuala
Banda Aceh 23111, Indonesia

*E-mail: zjalil@unsyiah.ac.id

Abstract. *One of the future technologies for a safe hydrogen storage media is metal hydrides. Currently, Mg-based metal hydride has a safety factor and efficient for vehicle applications. However, the thermodynamic properties of magnesium hydride (MgH_2) found a relatively high temperature. High desorption temperatures caused MgH_2 high thermodynamic stability resulting desorption enthalpy is also high. In this study, natural mineral (iron ore) has been extracted from iron sand into powder of magnetite (Fe_3O_4) and used as a catalyst in an effort to improve the desorption properties of MgH_2 . Magnetite has been successfully extracted from iron sand using precipitation method with a purity of 85 %, where the purity of the iron sand before extracted was 81%. Then, $\text{MgH}_2\text{-Fe}_3\text{O}_4$ was milling using mechanical alloying method with a variety of catalysts and milling time. The observation by XRD showed the material was reduced to nanocrystalline scale. MgH_2 phase appears as the main phase. DSC test results showed with the addition of Fe_3O_4 , the desorption temperature can be reduced up to 366°C , compared to pure MgH_2 reached by 409°C . Furthermore, based on gravimetric test, the hydrogen release occurs at a temperature of 388°C , weight loss of 0.66 mg during 16 minutes.*

Keywords: Magnetite, iron sand, desorption temperature, MgH_2 , hydrogen storage.

I. PENDAHULUAN

Teknologi energi masa depan pada penyimpanan media hidrogen yang aman salah satunya menggunakan hidrida logam. Metal hidrida merupakan media penyimpanan hidrogen yang aman dan efisien untuk aplikasi kendaraan. Hidrida logam telah menjadi riset penelitian yang intensif pada saat ini karena aplikasi untuk penyimpanan hidrogen memiliki potensi kapasitas yang tinggi baik dalam massa dan volume. Namun dari termodinamika properties magnesium hidrida (MgH_2) didapatkan tempertaur yang relatif tinggi, yang diperlukan selama reaksi absorpsi/desorpsi hidrogen sekitar ($300^\circ\text{C} - 415^\circ\text{C}$ pada 1 bar). Temperatur desorpsi yang tinggi disebabkan stabilitas termodinamika MgH_2 yang tinggi sehingga menghasilkan entalpi desorpsi yang tinggi pula (sekitar 74 KJ/Mol H_2). Selain itu dibutuhkan waktu yang lama (secara umum 50 jam) untuk benar benar merubah magnesium menjadi Magnesium hidrida [1].

Upaya yang telah dilakukan secara intensif untuk mengatasi permasalahan diatas yaitu memperbaiki karakteristik Mg, adalah mereduksi ukuran butir material hingga skala nanokristal dengan teknik *mechanical alloying* [2], membentuk material komposit [3,4], dan upaya penambahan katalis tertentu, seperti logam dan oksida logam [5,6]. Dalam penelitian ini bahan alam (pasir besi), yang telah di ekstrak menjadi serbuk Fe_3O_4 dijadikan katalis sebagai upaya untuk memperbaiki sifat serapan dan kinetika reaksi material penyimpan hidrogen berbasis magnesium.

II. METODOLOGI PENELITIAN

Bahan-bahan pada penelitian ini terdiri dari material utama MgH_2 murni (99,99%, ukuran $50\mu\text{m}$, produksi *sigma Aldrich*), serbuk oksida besi Fe_3O_4 yang berasal dari pasir besi pesisir pantai lampanah Aceh yang sebelumnya telah mengalami ekstraksi baik dengan *magnetion separation*, dan perlakuan kimia dengan menggunakan metode Kopresipitasi. Selanjutnya dilakukan proses penghalusan dengan

teknik *mechanical alloying*, Masing-masing bahan ini disintesa menurut komposisi $(MgH_2)_{100-x}M_x$, dengan M adalah elemen adisi (Fe_3O_4) dan X komposisi dalam persen berat (5 wt%, 10 wt%, 15wt%). Adapun rasio bola dan material adalah 10:1 dengan berat sampel total 1 gram kemudian dimiling selama 24 jam dengan kecepatan milling 300 rpm. Sejumlah kecil sampel dipindahkan kedalam wadah lain distiap rentang waktu tertentu untuk keperluan karakterisasi lebih lanjut.

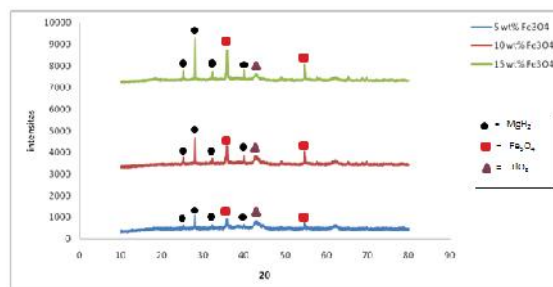
Untuk mengetahui komposisi fasa yang hadir, dilakukan identifikasi kualitatif dengan menggunakan X-Ray *diffraction* (XRD) (*Philips PW 3710 diffractometer*, radiasi Co-K α ($\lambda = 1.78896 \text{ \AA}$), Analisa struktur mikro material dipelajari dengan menggunakan perangkat mikroskop elektron (SEM *jeol JSM - 5310LV*). Selanjutnya analisis termal dilakukan dengan menggunakan alat *differential scanning calorimetry* (DSC, Shimadzu).

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Evolusi dari pola-pola difraksi sinar-X pada variasi berat katalis yaitu 5 wt%, 10wt%, dan 15 wt% Fe_3O_4 , yang telah dimiling selama 24 jam dapat dilihat pada Gambar 1. Senyawa MgH_2 dan Fe_3O_4 telah bercampur, hal ini di tandai dengan munculnya fasa senyawa Fe_3O_4 pada hasil XRD. Pada penambahan katalis 5 wt% terlihat bahwa fasa yang hadir yakni magnesium hidrida (MgH_2) sebagai fasa utama pada kedudukan $2\theta = 27.8870^\circ$. Fasa MgH_2 terlihat lebih dominan dan muncul pada sudut difraksi $2\theta = 35,7019^\circ$; $54,5895^\circ$. Hasil XRD pada penambahan katalis 10 wt% dan 15 wt% menunjukkan perubahan pola difraksi, dimana intensitas fasa MgH_2 berada pada berada pada sudut $2\theta = 27,92^\circ$ dan Fe_3O_4 juga mengalami peningkatan fasa yaitu pada sudut $2\theta = 67,54^\circ$. Fasa Fe_3O_4 sudah terdeteksi dengan jumlah intensitas yang semakin besar, hal ini disebabkan karena bertambahnya nilai fraksi volume Fe_3O_4 yang berfungsi sebagai katalis. Terlihat juga bahwa masih tampak fasa pengotor pada puncak difraksi yaitu fasa TiO_2 pada sudut $2\theta = 42,26^\circ$, hal ini disebabkan karena sampel yang digunakan berasal dari alam dimana fasa pengotornya masih banyak. Hasil pengamatan morfologi permukaan sampel dengan menggunakan *Scanning Elektron Microscope* (SEM) diperlihatkan pada gambar 2.

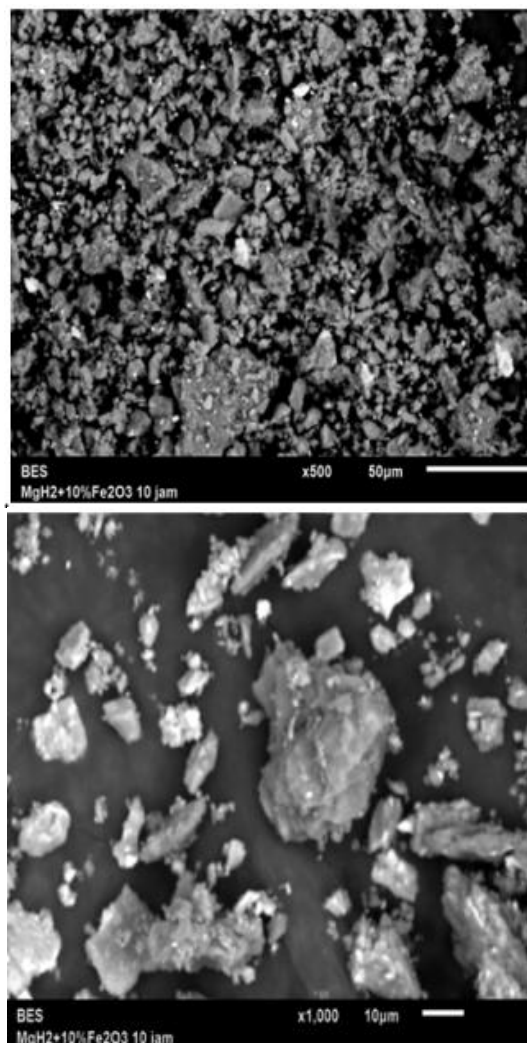
Hasil analisa struktur menunjukkan pada pembesaran 500x ukuran partikel sekitar $50\mu m$, yang terdistribusi merata di seluruh permukaan sampel. Kemudian pada pembesaran 1000x terlihat bahwa ukuran partikel sekitar $10\mu m$ juga terdistribusi merata diseluruh permukaan sampel,

dimana selama proses milling 24 jam adanya efek *aglomerasi* dan *coldwelding* yang menyebabkan ukuran partikel menjadi mengumpul.

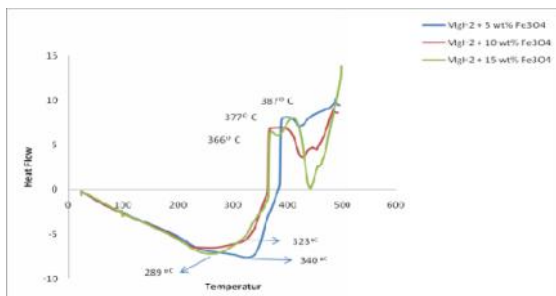


Gambar 1. Pola difraksi XRD variasi katalis $MgH_2+Fe_3O_4$

Gumpalan gumpalan besar yang terlihat merupakan aglomerasi dari partikel partikel kecil yang diduga akibat kurangnya aseton saat preparasi sampel dan juga preparasi sampel SEM kurang baik.



Gambar 2. Analisis morfologi permukaan pada variasi katalis $MgH_2+Fe_3O_4$



Gambar 3. Grafik DSC variasi katalis $MgH_2+Fe_3O_4$

Hasil analisis termal menunjukkan bahwa penambahan katalis memperlihatkan penurunan temperatur desorpsi, dimana temperatur puncak dapat direduksi hingga berkisar antara 10-20 °C. Hasil ini berhasil memperbaiki temperatur MgH_2 murni yang temperaturnya mencapai 409 °C. Temperatur desorpsi terjadi pada kisaran 366°C. Merujuk data *International Energy Agency (IEA)*⁷ yang menetapkan target temperature operasional untuk sistem penyimpanan hydrogen yaitu $\leq 100^\circ C$, pada temperatur yang diperoleh pada penelitian ini terhitung masih tinggi untuk aplikasi kendaraan berbahan bakar *fuel cell*.

IV KESIMPULAN

Berdasarkan hasil pengamatan XRD menunjukkan bahwa material MgH_2 disisipkan dengan katalis Fe_2O_3 yang di *milling* dengan menggunakan teknik *mechanicall alloying* membentuk fasa utama MgH_2 dan Fe_3O_4 sebagai fasa minor. Pada saat sisipan katalis ditambah terjadi pelebaran puncak difraksi. Hal ini mengindikasikan mulai terjadi reduksi ukuran butir. Penambahan katalis juga memperlihatkan penurunan temperatur desorpsi yang signifikan, dimana temperatur puncak dapat direduksi hingga berkisar antara 10-20 °C. Hasil ini berhasil memperbaiki temperatur MgH_2 murni yang mencapai 409 °C.

REFERENSI

1. Billur Sakintuna, Farida Lamari-Darkim., Michael Hirscher. 2007. Metal Hydride Materials for Solid Hydrogen Storage: A review. *International Journal of hydrogen Energy*. Vol. 32 (9) 1121-1140.
2. Song, M, Y, dkk. 2005. Development of Hydrogen-Storage Alloys of Mg- Fe_2O_3 System by Reactive Mechanical Grinding, *International Journal of Hydrogen Energy* Vol. 30(10) pp 1107-1111.
3. Kyeong-II Kim and Tae-Whang Hong, Hydriding/Dehydriding Behavior of MgHx-Iron Oxides Composites, *Eco-Devices and Materials*, Vol.17, No.6 (2011),pp.1001-1007
4. H. Yuan, Y. An, G. Xu, C. Chen, Hydriding behavior of magnesium-based hydrogen storage alloy modified by mechanical ball-milling, *Mater. Chem. Phys.*, 83 (2004) 340
5. W. Oelerich, T. Klassen, R. Bormann, Metal oxides as catalysts for improved hydrogen sorption in nanocrystalline Mg-based materials, *Journal of Alloys and Compounds* 315 (2001) 237-242
6. Zaluska, A, Zaluski, L, and Stroem-Olsen. 1999. Nanocrystalline Magnesium for Hydrogen Storage. *J. Alloys. Compd*, Vol. 288, pp. 217-225.
7. Züttel. 2003. Materials for Hydrogen Storage. *Materials Today* pp. 24-33.