

Modifikasi sifat elektrokimia katalis paduan Pt-Ni Nanokristalin untuk meningkatkan performa katoda pemfc

Nenen Rusnaeni, author

Deskripsi Lengkap: <https://lib.ui.ac.id/detail?id=20306699&lokasi=lokal>

Abstrak

Komersialisasi Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) hingga kini masih menyisakan beberapa parameter sebagai pekerjaan rumah sehingga masih terus dilakukan investigasi, terutama yang terkait dengan penurunan harga, life time, scaleup dan peningkatan aktivitas katalitik. Dalam rangka memecahkan kedua permasalahan tersebut, penelitian ini dilakukan dengan tujuan turut berkontribusi dalam pengembangan katalis berbasis paduan platina (Pt) berpenyangga karbon aktif (C) untuk reduksi oksigen (O_2) dengan laju reaksi yang tinggi pada sisi katoda. Tujuan khusus pertama pada penelitian ini adalah melakukan studi pengaruh penambahan NaOH pada pembentukan katalis nanokristalin dari paduan Pt-Ni yang terdistribusi dengan baik pada penyangga C, dengan dispersi yang tinggi dan loading Pt maksimal. Tujuan khusus yang kedua adalah melakukan studi pengaruh rasio atomik Pt pada dispersi permukaan dan aktivitas katalitik dari katalis nanokristalin Pt-Ni.

Metode penelitian diawali dengan pembuatan katalis Pt-Ni/C, yang kemudian dilanjutkan dengan melakukan karakterisasi fisik dan uji aktivitas katalitik. Katalis Pt-Ni/C dibuat dengan menggunakan metode polyol yang terdiri atas tiga tahapan, yaitu: tahapan dispersi larutan precursor (material awal), tahapan reduksi dan yang terakhir adalah tahapan untuk menghasilkan serbuk katalis. Pt/C komersial buatan E-TEK dipakai sebagai pembandingan pada penelitian ini. Ethylene glycol (EG) dipergunakan sebagai pelarut sekaligus agen reduksi dengan loading Pt-Ni sebesar 30 %-b. Sampel katalis kemudian dikarakterisasi menggunakan X-ray diffraction (XRD) untuk mengetahui struktur kristalin dan ukuran kristalit; menggunakan scanning electron microscopy dan energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX) untuk mengetahui morfologi dan komposisi elemen; serta menggunakan khemisorpsi hidrogen untuk mengetahui dispersi platina pada permukaan katalis. Uji setengah sel dilakukan dengan menggunakan cyclic voltametry (CV) pada media $HClO_4$ untuk mengetahui aktivitas katalitik (mass activity/MA dan specific activity/SA). Aktivitas katalis Pt-Ni berpenyangga karbon terhadap reaksi reduksi oksigen (Oxygen Reduction Reaction/ORR) diuji pada potensial 900 mV vs RHE dengan 1M $HClO_4$ dan laju pemindaian sebesar 5 mV s⁻¹ dan temperatur 25oC . Hasil analisis ketiga parameter tersebut memperlihatkan adanya hubungan antara kemampuan permukaan paduan Pt-Ni sebagai site aktif dengan adsorpsi oksigen (O_2).

Pola difraksi kristalit berubah sejalan dengan dilakukannya variasi pada volume NaOH. Pola XRD dari sampel PtNi11-5 menunjukkan struktur kubik berpusat sisi (face center cubic/fcc) disorder dengan ukuran partikel sekitar 5 nm. Hasil analisis EDX terhadap sampel tersebut juga memperlihatkan bahwa komposisi Pt-Ni pada karbon adalah 29%, sementara adsorpsi hidrogen pada atom Pt yang ditunjukkan diatas permukaan nanokatalis juga 29%. Parameter struktur kristalin, ukuran partikel serta dispersi Pt di permukaan dan loading Pt pada sampel PtNi11-5, menunjukkan kondisi reaksi yang memadai untuk dipergunakan dalam penelitian lebih lanjut. Telah dibuat 3 (tiga) sampel nanokristalin paduan Pt-Ni/C dengan berbagai rasio atomik yang sama persis kondisinya seperti kepunyaan sampel PtNi11-5. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa semua sampel yang dipersiapkan dengan berbagai rasio atomik

memperlihatkan struktur kristalin fcc dan memiliki parameter kisi yang lebih kecil dibandingkan dengan katalis Pt murni serta mempunyai ukuran partikel katalis berkisar antara 4,3-6,3 nm. Paduan Pt-Ni/C akan menjadi order ketika dilakukan proses pemanasan sehingga ukuran kristal untuk sampel PtNi11-5 membesar dari 5,7 nm menjadi 7,1 nm.

Dari voltamogram siklik hasil karakterisasi pada lingkungan N₂ menunjukkan bahwa nilai rentang luas permukaan elektrokimia (ESA) aktif dari sampel nanokatalis Pt-Ni/C yang dibuat berkisar antara 37-156 cm²/mgPt, Mass Activity (MA) nya antara 3,61-8,42 mA/mgPt dan Specific Activity (SA) nya antara 49-99 μ A/cm². Sementara itu, dengan cara yang sama seperti perlakuan pada sampel dilakukan pula pengukuran ESA, MA dan SA terhadap Pt/C E-TEK komersial dan mendapatkan hasil 161 cm²/mgPt, 4,77 mA/mgPt, dan 30 μ A/cm².

Hubungan antara luas permukaan elektrokimia (ESA) dengan struktur mikroskopis permukaan logam telah memainkan peran penting dalam laju kinetika. Hasil penelitian menunjukkan bahwa sampel PtNi11-5 memberikan SA tiga kali lebih tinggi bila dibandingkan dengan katalis komersial Pt/C E-TEK, meskipun MA nya masih sedikit lebih rendah. Hasil penelitian ini memberikan kontribusi nyata terhadap penurunan harga bahan elektro-katalis yang dipakai pada katoda PEMFC melalui pengurangan loading Pt setengahnya dengan SA tiga kali lebih besar.

.....

The commercialization of Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) are still leaving some parameters as homework, hence investigations on the subject are still underway, especially on those associated with reduced prices, life time, scale-up and increased catalytic activity. In order to solve both problems, this Dissertation research was conducted with the aim at developing a platinum (Pt) alloy-based catalyst supported by activated carbon (C) for the reduction of oxygen (O₂) with a high rate of reaction on the cathode side. The first specific objective of this research is to study the effect of the addition of NaOH to the formation of nanocrystalline catalyst from the Pt-Ni alloys that have been well-distributed on the C supporter, with high dispersion and maximum Pt loading. The second specific objective is to study the influence of atomic ratio of Pt on the surface dispersion and on the catalytic activity of the Pt-Ni nanocrystalline catalyst.

The research method was initiated with the fabrication of Pt-Ni/C catalysts, which was followed by the physical characterization and catalytic activity tests. The Pt-Ni/C catalyst was prepared by using the polyol method which consists of three stages: the stage of precursor solution dispersion (initial material), the reduction stage, and the final stage was the one that produced the powder catalysts. Commercial Pt/C E-TEK was used as comparison sample in this study. Ethylene glycol (EG) is used as solvent as well as reduction agent with Pt-Ni loading of 30%-wt. The prepared catalyst sample was then characterized by using X-ray diffraction (XRD) to determine the crystalline structure and crystallite size, by using scanning electron microscopy-and energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX) analysis to determine the morphology and composition of elements; and by using hydrogen chemisorptions to find out about the platinum dispersion on the catalyst surface. Tests on half cell was carried out by using cyclic voltammetry (CV) on the HClO₄ medium to find out about the catalytic activities that consist of mass activity/MA and specific activity/SA. The catalytic activity (mass activity / MA and the specific activity / SA) of the carbon-supported Pt-Ni catalyst against the oxygen reduction reaction was tested by cyclic voltammetry (CV) at 900 mV vs. RHE with 1M HClO₄ solution, the scan rate of 5 mV/s and temperature of 25°C. The analysis results of the three above parameters showed a link between the ability of the surface of the Pt-Ni

alloy as an active site with the adsorption of oxygen (O₂).

The results show that the diffraction pattern of the crystallites changes when the content of NaOH varies. The XRD patterns of the PtNi11-5 samples show disorder structure of face cubic centre (fcc) with particle size of around 5 nm. The result of EDX analysis against the sample also shows that the Pt-Ni compositions on carbon around 29 %-wt, whereas hydrogen adsorption on Pt atom that is shown on the PtNi11-5 nanoparticle surface is also approximately 29%. The crystalline structure, particle size, Pt loading and dispersion parameters of PtNi11-5 sample, show sufficient reaction conditions to be used in further research. Three samples of the nanocrystalline Pt-Ni/C alloy with atomic with varied atomic ratios that are exactly similar to the condition of PtNi11-5 sample were made. The XRD analysis results show that the all samples that have been prepared with various atomic ratios show disordered structures fcc with particle size that is smaller compared to pure Pt catalyst and have catalyst particle sizes of from 4.3 to 6.3 nm. The Pt-Ni/C alloys will become orderly when heating processes are applied; the result is that the particle size in the PtNi11-5 sample agglomerates from 5.7 nm to 7.1 nm. The lattices parameter of the above samples is smaller than that of Pt/C catalyst.

The cyclic voltamogram as a result of characterization on N₂ area indicates that the active electrochemical surface area (ESA) of the prepared Pt-Ni/C nanocatalyst sample ranged from 37 - 156 cm²/mgPt, of which the Mass Activity (MA) was between 3.61-8.42 mA/mgPt, and the Specific Activity (SA) was between 49-99 μ A/cm². While, in the same way that has been carried out on the sample, ESA, MA and SA measurements were also carried out on the commercial Pt / C E-TEK sample, of which the results were 161 cm²/mgPt, 4.77 mA/mgPt, and 30 μ A/cm².

The relationship between the electrochemical surface area (ESA) with the microscopic structure of the metal surface, and Pt loading has played an important role in the kinetics rate. The result shows that the PtNi11-5 sample provides SA that is three times higher in comparison to that of the commercial Pt/C E-TEK catalyst, although the MA is still slightly lower. The result of this research has given a real contribution in reducing the price of electro-catalyst on PEMVC cathode through the reduction of Pt loading by half while the SA value is three times larger than that of the commercial Pt/C E-TEK.