

## Komposit $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF) sebagai Bahan Katod Tahan Lama bagi Sel Fuel Oksida Pejal Bersuhu Sederhana-Rendah: Ulasan Kajian

( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) Composite as Durable Cathode Materials for Intermediate-Low Temperature Solid Oxide Fuel Cell: Research Review)

Hamimah Abd.Rahman, Andanastuti Muchtar\*, Norhamidi Muhamad & Huda Abdullah

### ABSTRAK

Sel fuel oksida pejal (SFOP) merupakan sel fuel yang mampu menukarkan tenaga kimia kepada tenaga elektrik secara langsung dengan kecekapan tinggi. Di sebalik kelebihan seperti kecekapan penukaran tenaga yang tinggi, penghasilan bunyi yang rendah, kurang pencemaran dan penggunaan fuel yang pelbagai yang disediakan oleh SFOP, suhu operasi yang tinggi merupakan kekangan dalam kos pemprosesan dan peningkatan prestasinya. Oleh itu, penyelidikan dalam pembangunan bahan dan teknologi fabrikasi SFOP cenderung menumpu ke arah penurunan suhu operasi SFOP. Di antara banyak jenis bahan katod yang dikaji, lantanum strontium kobalt ferit,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) dan komposit LSCF adalah bahan yang semakin mendapat perhatian sebagai bahan katod bagi SFOP bersuhu sederhana-rendah. Penggunaan katod komposit LSCF telah berjaya mengurangkan rintangan pengutuban katod dan meluaskan kawasan sempadan tiga fasa bagi tindakbalas penurunan oksigen. Kaedah penghasilan serbuk dan proses pembentukan katod komposit juga mempengaruhi prestasi katod dan sel fuel secara keseluruhan. Oleh yang demikian, artikel ini akan memfokus kepada komposit LSCF sebagai katod tahan lama bagi SFOP daripada aspek pembangunan bahan, penghasilan serbuk dan teknik pembentukannya.

*Kata kunci:* Komposit LSCF; katod; SFOP bersuhu sederhana-rendah

### ABSTRACT

Solid oxide fuel cell (SOFC) is the most efficient fuel cell with the ability to directly convert chemical energy into electrical energy. Although there are numerous advantages offered by SOFCs, such as high energy conversion efficiency, low noise, less emission of pollutants and flexibility of hydrocarbon fuels, the processing cost and the performance improvement of SOFCs are hindered due to the higher operational temperatures. Therefore, the tendency to reduce the operational temperature of SOFC has brought about the development of research in materials and fabrication technology of fuel cells. Recently, among the many types of cathode materials that have been studied, lanthanum strontium cobalt ferrite,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) has been discovered to offer the most potential for use as cathode material in intermediate to low temperature SOFCs. The use of LSCF composite cathode has significantly reduced the cathode polarisation resistance and expanded the triple phase boundary (TPB) area available for oxygen reduction. The overall performance of cathodes and fuel cells are also influenced by the method of powder preparation and fabrication of the composite cathodes. As such, the present article focuses on the LSCF composites for use as durable cathode material in SOFCs from the aspects of materials development, powder preparation and fabrication techniques.

*Key words:* LSCF composite; cathode; intermediate-low temperature SOFC

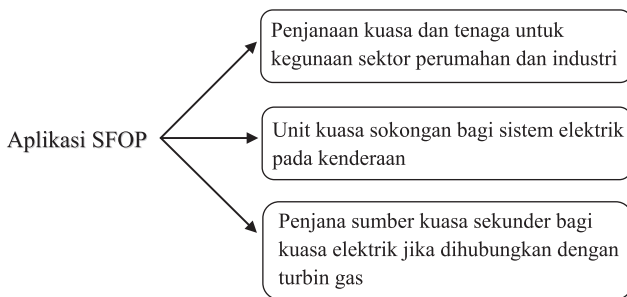
### PENGENALAN

Teknologi Sel Fuel Oksida Pejal (SFOP) merupakan teknologi bagi sistem tenaga kekal di masa hadapan. SFOP adalah alat penukar tenaga elektrokimia yang beroperasi pada suhu tinggi (melebihi 1000°C) dan mempunyai pelbagai kelebihan seperti kecekapan tinggi dalam penghasilan tenaga, kesesuaian yang baik terhadap pelbagai fuel, tahap pencemaran persekitaran dan bunyi yang rendah (Minh

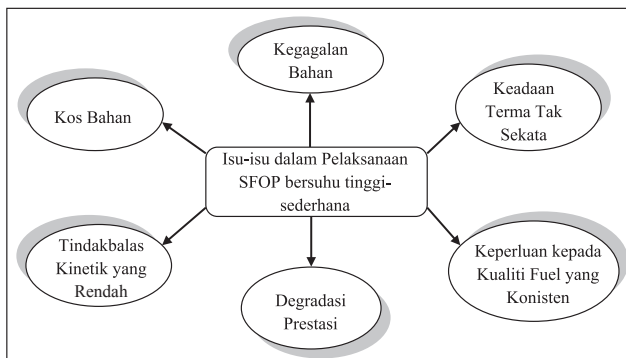
2004; Steven 2005). Penggunaan SFOP disasarkan kepada tiga aspek seperti yang dinyatakan dalam Rajah 1. Walau bagaimanapun, kebanyakan pembangunan SFOP dikekangi oleh kos pemprosesan yang tinggi dan cabaran keserasian bahan. Suhu operasi SFOP yang tinggi juga menyebabkan degradasi elektrod dan elektrolit yang pantas. SFOP pada suhu tinggi juga memerlukan masa permulaan dan penutupan yang lama bagi mengelakkan kejutan terma dan

kerusakan komponen (Steven 2005).

Pengurangan suhu operasi SFOP yang tinggi kepada suhu yang lebih rendah iaitu 500–700 °C merupakan pendekatan terkini yang diambil untuk mengurangkan masalah degradasi, meningkatkan kestabilan sel bagi jangka masa panjang, penggunaan bahan yang lebih murah dan seterusnya mengurangkan kos pembangunan sistem sel secara keseluruhan (Besra & Liu 2007; Song et al. 2006b; Steven 2005). Kekangan yang dihadapi dalam penggunaan SFOP adalah seperti yang diringkaskan dalam Rajah 2. Kekangan-kekangan ini meliputi penggunaan SFOP pada suhu operasi yang tinggi dan juga pada suhu yang menurun (Song et al. 2006; Liu & Zhang 2008; Fergus et al. 2009).



RAJAH 1. Sasaran Penggunaan SFOP

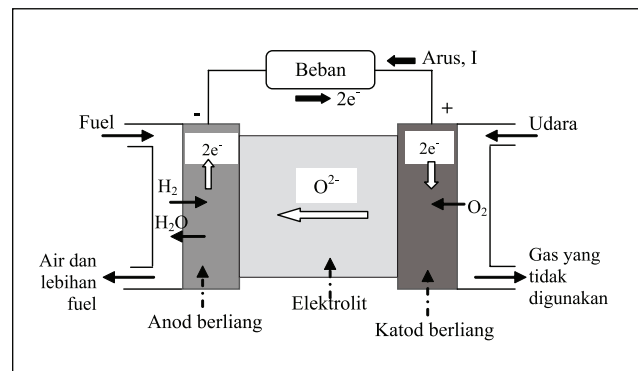


RAJAH 2. Kekangan dalam Pelaksanaan Penggunaan SFOP

Walau bagaimanapun, SFOP bersuhu sederhana-rendah menyebabkan penurunan prestasi bagi setiap komponen utama sel fuel iaitu elektrod dan elektrolit. Ini adalah kerana pengurangan suhu operasi mengakibatkan penurunan kekonduksian elektrolit dan kinetik katod. Penurunan suhu operasi SFOP juga membawa kepada kehilangan voltan atau keupayaan lampau yang disebabkan oleh rintangan pengutuban ( $R_p$ ). Pengutuban katod menyumbang kepada penurunan prestasi SFOP dan ia merupakan kehilangan voltan yang paling banyak berlaku berbanding pengutuban ohm dan pengutuban pengaktifan. Oleh itu, masalah rintangan elektrolit dan elektrod serta kehilangan pengutuban bagi SFOP bersuhu sederhana-rendah amat perlu diatasi bagi meningkatkan atau mengekalkan prestasi sel fuel ini berbanding SFOP bersuhu tinggi (Besra & Liu 2006; Liu & Zhang 2008; Song et al. 2006b). Masalah ini boleh diatasi melalui pemilihan bahan, rekabentuk sel dan keadaan operasi yang sesuai (Thydén 2008). Oleh yang

demikian, kajian untuk mengoptimalkan prestasi SFOP bersuhu sederhana-rendah perlu diperbanyakkan lagi.

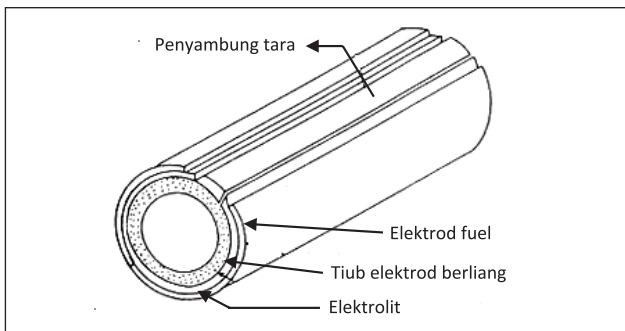
Rajah 3 menunjukkan komponen dan prinsip asas operasi bagi sel fuel. Oksigen yang dibekalkan ke katod (dikenali juga sebagai elektrod udara) akan bertindak balas dengan elektron yang masuk daripada litar luar untuk membentuk ion-ion oksida. Ion-ion oksida ini akan bergerak ke anod (elektrod fuel) melalui elektrolit. Ion oksida dan hidrogen bergabung membentuk air, seterusnya menghasilkan elektron di anod (Singhal 2009). Komponen-komponen sel fuel ini akan digabungkan menjadi stak dengan rekabentuk tertentu bagi membentuk sistem SFOP yang lengkap. Tiga rekabentuk yang diberi penekanan dalam pembangunan teknologi SFOP adalah bentuk tiub, planar dan monolit (Rajah 4). Perbezaan di antara ketiga-tiga rekabentuk ini hanyalah pada bahan penyambung tara (*interconnector*) sama ada ia menggunakan bahan seramik atau logam tetapi komponen-komponen utama selnya tetap sama seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 3.



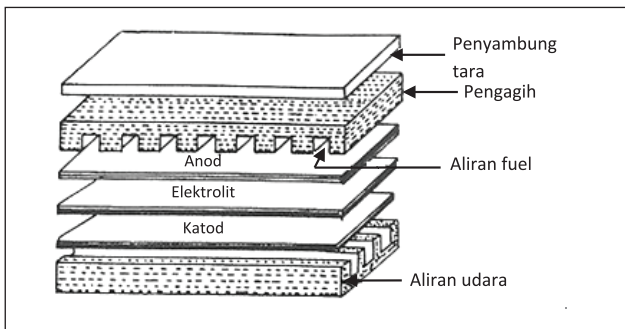
RAJAH 3. Gambarajah Skematik Menunjukkan Prinsip Asas Operasi SFOP

Komponen katod dalam sel fuel merupakan sejenis bahan berliang yang diisi dengan udara atau oksigen. Katod adalah elektrod di mana berlakunya proses penurunan oksigen. Ia kebiasaannya dihasilkan daripada bahan yang mempunyai kekonduksian elektron yang tinggi bagi membenarkan oksigen ( $O_2$ ) melalui sempadan tiga fasa. Sempadan tiga fasa bagi katod menyediakan ruang di mana elektrolit, udara dan elektrod berhubung di antara satu sama lain dan di sinilah berlakunya tindak balas elektrokimia. Bagi mengoptimalkan prestasi elektrod, maka adalah penting untuk menambah ruang sempadan tiga fasa yang aktif (Viswanathan & Scibioh 2007).

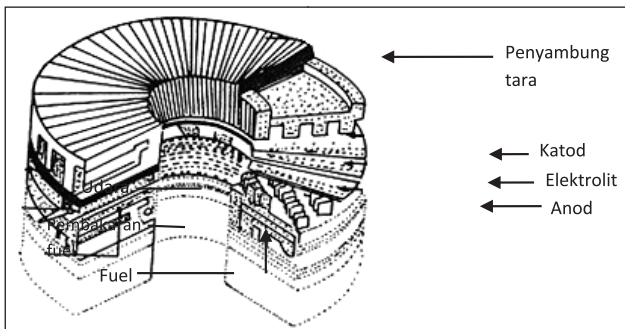
Bahan katod boleh dikelaskan kepada dua jenis iaitu pengkonduksi elektronik dan pengkonduksi campuran ionik-elektronik. Pengkonduksi elektronik adalah bahan yang mengkonduksikan pembawa cas elektron seperti perovskit lantanum strontium manganit (LSM). Walau bagaimanapun, kekurangan sifat kekonduksian ion dalam bahan katod perovskit seperti LSM menghadkan kawasan sempadan tiga fasa dan seterusnya menjejaskan prestasi katod secara keseluruhan. Oleh itu, bahan pengkonduksi campuran ionik-elektronik (*mixed ionic-electronic conductors*, MIECs) yang berkebolehan mengkonduksi



(a) Tiub



(b) Planar



(c) Monolit

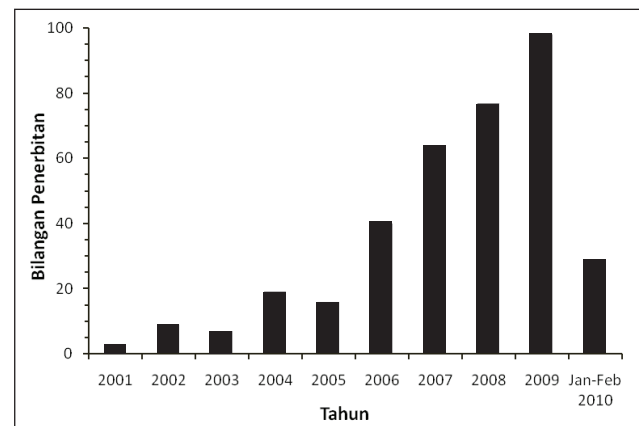
RAJAH 4. Rekabentuk SFOP (Viswanathan &amp; Scibioh 2007)

pembawa cas ionik dan elektronik (elektron dan/atau lohong) seperti lantanum strontium kobalt ferit (LSCF) telah digunakan bagi melebarkan kawasan sempadan tiga fasa ini dan membantu meningkatkan prestasi SFOP (Fergus et al. 2009; Riess 2003).

Buat masa kini, bahan katod yang berpotensi tinggi dan semakin berkembang penggunaannya ialah katod perovskit LSCF (Beckel et al. 2006; Lee et al. 2009; Leng et al. 2004; NoorAshrina et al. 2009; Raj et al. 2004). Katod perovskit merupakan pengkonduksi ionik dan elektronik serta mempunyai aktiviti pemangkin yang baik bagi membolehkan tahap penurunan oksigen yang tinggi. Kajian yang telah dijalankan oleh Doshj et al. (1999) dan Simner et al. (2003) menumpu pada katod LSCF kerana ia mempunyai sifat keupayaan lampau dan keberaliran elektrik yang lebih baik pada suhu rendah berbanding LSM. Kekondusian ionik oksigen yang sangat rendah merupakan faktor utama kehilangan pengutuban yang tinggi dalam katod LSM

bagi tindakbalas penurunan oksigen pada SFOP bersuhu rendah. Ini merupakan penyebab utama LSM tidak mampu memberikan prestasi yang sepatutnya bagi operasi SFOP pada suhu sederhana-rendah (Fergus et al. 2009; Ralph et al. 2001).

Beberapa pendekatan telah dilakukan oleh para penyelidik untuk memperbaiki ciri-ciri pengutuban katod. Satu cara berkesan untuk mengurangkan keupayaan lampau katod yang telah dibuktikan oleh Leng et al. (2004), Leng et al. (2008), Shao dan Haile (2004) dan Xia dan Liu (2002) adalah melalui penggunaan komposit elektrod. Teknologi komposit dikenali mampu membenarkan penghasilan elektrod dengan sifat luas permukaan berkesan yang tinggi bagi meningkatkan kecekapan tindak balas penukaran oksigen dan seterusnya mengurangkan keupayaan lampau elektrod (Leng et al. 2008; Lin & Barnett 2008). Sehubungan dengan itu, pengaruh kaedah penghasilan serbuk katod dan pembentukan komponen katod ke atas sifat dan prestasi sel fuel perlu diambil kira dalam membangunkan bahan baru katod bagi aplikasi SFOP bersuhu sederhana-rendah yang didasarkan (Fergus et al. 2009).



RAJAH 5. Peningkatan Bilangan Penerbitan Jurnal SFOP Berkaitan Katod Komposit

(kata kunci carian "solid oxide fuel cell-cathode-composite" dalam ISI Web of Knowledge, Thomson Reuters  
<http://apps.isiknowledge.com.www.ezplib.ukm.my>, 2 Mac 2010)

#### BAHAN KATOD KOMPOSIT

Prestasi bahan katod sangat bergantung kepada saiz ira, mikrostruktur, proses pembentukan atau pengendapan dan suhu (Wincewicz & Cooper 2005). Liu dan Zhang (2008), NoorAshrina A. Hamid et al. (2009), Ralph et al. (2001) dan Song et al. (2006a) telah mendapati bahawa LSCF merupakan calon bahan katod yang baik bagi SFOP bersuhu sederhana-rendah (600-800 °C). Sehingga kini, pembangunan bahan baru katod komposit LSCF terus berkembang. Kenyataan ini disokong oleh peningkatan penerbitan jurnal mengenai katod komposit yang semakin meningkat setiap tahun seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 5. Oleh itu, maklumat dan kajian yang lebih terperinci diperlukan bagi mengenalpasti keupayaan prestasi katod komposit ini.

## SIFAT KATOD KOMPOSIT LSCF

Gabungan LSCF dengan bahan konduktor ionik seperti seria terdop samarium (SDC) dan seria terdop gadolinia (GDC) akan melebarkan kawasan aktiviti elektrokimia disebabkan oleh kekonduksian ionik yang lebih tinggi pada SDC dan GDC berbanding perovskit. LSCF tidak bertindak balas dengan elektrolit seria dan mempunyai pekali pengembangan terma yang sama. Ini memberikannya keupayaan untuk beroperasi pada suhu rendah (Yamamoto 2000). Jadual 1 menunjukkan sifat rintangan pengutuban dan tenaga pengaktifan pada suhu di antara 600–800 °C bagi bahan katod komposit yang telah berjaya dibangunkan oleh para penyelidik terdahulu.

Murray et al. (2002) dan Wang dan Mogensen (2005) telah menghasilkan katod komposit LSCF-50%GDC yang diaplikasikan pada substrat elektrolit zirkonia terstabil yitria (YSZ). Walaupun kedua-dua katod ini mempunyai komposisi yang sama tetapi nilai  $R_p$  dan  $E_a$  yang diperolehi berbeza. Perbezaan ini dipercayai berpunca daripada morfologi mikrostruktur katod yang dihasilkan. Wang dan Mogensen (2005) telah berjaya memperolehi mikrostruktur dengan partikel bersaiz nano hingga submikron dengan majoritinya bersaiz 100 nm yang dapat membantu meningkatkan kawasan sempadan tiga fasa dengan lebih berkesan berbanding Murray et al. (2002) yang memperolehi partikel dalam julat saiz yang lebih besar iaitu 100–200 nm. Pelekatan yang baik di antara katod dan

elektrolit juga menyumbang kepada penurunan nilai  $R_p$  yang lebih ketara (Wang & Mogensen 2002).

Kajian yang dijalankan oleh Leng et al. (2004) pula menunjukkan katod komposit  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ -GDC mampu memberikan prestasi sel yang tinggi dengan ketumpatan kuasa maksimum 578 mW/cm<sup>2</sup> pada suhu 600 °C. Katod komposit  $\text{La}_{0.58}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ -SDC yang digabungkan dengan elektrolit SDC juga telah memberikan prestasi yang baik. Penambahan 50%SDC pada LSCF telah berjaya menghasilkan katod komposit dengan mikrostruktur berliang halus yang membantu meningkatkan kawasan sempadan tiga fasa bagi membolehkan tindak balas kimia berlaku dengan lebih cekap (Fu et al. 2007; Lee et al. 2010).

Sementara itu, komposit  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ -LSGM yang dihasilkan oleh Lin dan Barnett (2008) pula berkeupayaan menawarkan prestasi elektrokimia yang terbaik pada kandungan LSCF di antara 40 hingga 60% berat. Walau bagaimanapun, kandungan LSCF yang melebihi 60% berat telah menyebabkan nilai rintangan pengutuban menjadi lebih tinggi. Kajian menunjukkan bahawa katod komposit LSCF-elektrolit seria mempunyai keserasian yang amat baik dan mampu memberikan prestasi katod yang tinggi jika komposisi komposit yang sesuai digunakan. Kejayaan penyelidik membangunkan bahan katod komposit ini perlu diteruskan bagi mendapatkan bahan yang paling sesuai dengan kriteria optimum sebagai suatu bahan katod sel fuel.

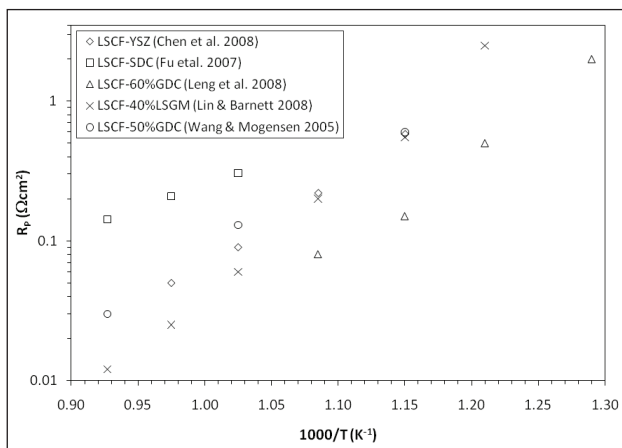
JADUAL 1. Sifat Rintangan Pengutuban dan Tenaga Pengaktifan bagi Beberapa Bahan Katod Komposit yang Telah Dibangunkan

Katod komposit	Rintangan pengutuban, $R_p$ ( $\Omega\text{cm}^2$ )	Tenaga pengaktifan, $E_a$ (eV)	Rujukan
LSCF-YSZ	0.54-0.05	-	Chen et al. 2008
LSCF-30%GDC	0.60	$\approx 1.45$	Dusastre & Kilner 1999
LSCF-50%SDC	0.23-0.07	1.49	Fu et al. 2007
LSCF-40%LSGM	0.24	-	Guo et al. 2009
LSCF-50%SDC	0.265-0.53	-	Lee et al. 2010
LSCF-60%GDC	0.17	1.40	Leng et al. 2008
LSCF-(40-60%)LSGM	0.18	1.63	Lin & Barnett et al. 2008
LSCF-50%GDC	0.33-0.01	1.65	Murray et al. 2002
LSCF-50%GDC	0.19-0.03	1.20	Wang & Mogensen 2005



## KATOD KOMPOSIT LSCF BERSTRUKTUR NANO

Pendekatan lain yang dilakukan oleh penyelidik untuk meningkatkan prestasi keseluruhan SFOP adalah melalui penggunaan katod perovskit berstruktur nano (Serra et al. 2006). Kajian yang dibuat oleh Barque et al. (2008) dengan menggunakan serbuk katod bersaiz 130-180 nm, membuktikan bahawa prestasi katod dan rintangan luas tentunya sangat bergantung kepada mikrostruktur dan komposisi. Katod komposit  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Co}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$ -YSZ terdop zirkonia oksida memberikan nilai  $R_p$  bagi tindak balas penurunan  $\text{O}_2$  di antara 0.539 hingga 0.047  $\Omega\text{cm}^2$  pada suhu 600 hingga 750  $^\circ\text{C}$ . Ini menjadikan ia bahan katod yang berpotensi untuk SFOP bersuhu sederhana. Graf  $R_p$  terhadap suhu bagi katod komposit seperti yang ditunjukkan pada Rajah 6 telah membuktikan bahawa serbuk bersaiz nano mampu memberikan prestasi yang



RAJAH 6. Perkaitan di Antara Rintangan Pengutuban ( $R_p$ ) di Udara Terhadap Suhu pada Pelbagai Jenis Elektrod Katod Komposit LSCF Berstruktur Nano

baik dengan nilai  $R_p$  yang rendah (Chen et al. 2008; Fu et al. 2007; Leng et al. 2008; Lin & Barnett 2008; Wang & Mogensen 2005).

Lee et al. (2009) juga telah melaporkan penggunaan partikel bersaiz 89 nm untuk penghasilan katod berliang nano. Kestabilan jangka masa panjang dengan nilai  $R_p$  yang rendah bagi katod komposit nano LSCF-SDC telah diperolehi oleh Lee et al. (2010) dengan memanipulasi saiz mula partikel SDC dan LSCF yang digunakan. Prestasi cemerlang katod komposit LSCF-GDC yang dihasilkan oleh Wang dan Mogensen (2005) dipercayai disumbangkan oleh katod yang berstruktur nano dan submikron. Kajian yang telah dijalankan berjaya membuktikan penggunaan serbuk katod bersaiz nano mampu meningkatkan prestasi katod. Terdapat dua pendekatan yang digunakan oleh penyelidik untuk meningkatkan prestasi SFOP melalui penggunaan katod perovskit berstruktur nano iaitu (1) sintesis partikel berliang meso dan pengendapan partikel tersebut membentuk filem berliang makro dengan menggunakan teknik penyalutan seperti pencetakan skrin dan (2) pembentukan filem berstruktur nano daripada

bahan elektrokatalis bersaiz partikel nano di atas elektrolit (Serra et al. 2006).

Walau bagaimanapun, masih terdapat banyak lagi aspek yang boleh dikaji melibatkan penggunaan serbuk bersaiz nano dalam penghasilan katod komposit seperti kesannya terhadap degradasi sel fuel, kestabilan elektrod dalam jangka masa panjang, kaedah fabrikasi yang optimum dan sebagainya.

## PENGHASILAN SERBUK KATOD KOMPOSIT LSCF

Prosedur penghasilan serbuk katod komposit akan mempengaruhi mikrostrukturnya termasuklah saiz ira, sempadan ira, keliangan dan amaun bendasing yang mana seterusnya memberi kesan kepada sifat bahan katod tersebut. Berbilang kajian yang telah dijalankan memfokus kepada peningkatan prestasi katod melalui pengawalan mikrostruktur bagi menambahkan luas permukaan yang aktif untuk tindakbalas penurunan oksigen.

Kaedah pengisaran bebola merupakan antara kaedah penghasilan serbuk katod komposit yang sering digunakan (Guo et al. 2009; Leng et al. 2004; Leng et al. 2008; Lin & Barnett 2008; Zhang et al. 2009). Pelarut organik seperti etanol, propanol dan pengikat organik dicampurkan dengan serbuk bahan katod dalam proses pengisaran ini. Di samping itu, Tao et al. (2009) pula menggunakan bahan pembentuk liang seperti butiran halus polimetil metakrilat (*polymethyl methacrylate*, PMMA) yang berfungsi untuk menambah keliangan katod komposit bagi meningkatkan sifat penyerapan katod.

Selain daripada proses pengisaran bebola, terdapat beberapa lagi kaedah yang lazim diaplikasikan dalam penghasilan serbuk katod komposit LSCF. Beckel et al. (2006) dan Wang dan Mogensen (2005) telah menggunakan kaedah semburan pirolisis. Kaedah ini didapati berjaya menghasilkan serbuk komposit dengan luas permukaan yang tinggi dan membantu kepada peningkatan prestasi katod. Sementara itu, kaedah pencampuran mekanik-kimia merupakan satu lagi kaedah yang boleh dipilih bagi penghasilan serbuk katod komposit (Hagiwara et al. 2006; Simner et al. 2007). Chen et al. (2008) pula telah menjalankan proses impregnasi serbuk katod LSCF ke atas elektrolit zirkonia terstabil ytria (YSZ) bagi menghasilkan katod komposit LSCF-YSZ. Penggunaan kaedah kompleks pempolimeran dikenalpasti mampu menyediakan serbuk katod komposit nano yang memberikan nilai  $R_p$  yang lebih rendah berbanding proses pengisaran biasa (Lee et al. 2010).

Saiz partikel serbuk katod komposit adalah faktor penting yang mempengaruhi mikrostruktur dan prestasi katod yang dihasilkan. Hubung kait di antara saiz partikel serbuk elektrolit dan katod yang digunakan dalam penghasilan katod komposit nano merupakan antara faktor yang menentukan prestasi katod di mana penggunaan saiz elektrolit yang lebih halus tidak semestinya memberikan nilai  $R_p$  yang paling rendah tetapi nisbah saiz relatif di antara serbuk elektrolit dan katod telah dikenalpasti memainkan

peranan (Song et al. 2010). Kajian yang dijalankan oleh Song et al. (2006a) telah mendapati bahawa penggunaan partikel LSM bersaiz submikron dengan suhu pensinteran yang lebih rendah boleh memberikan prestasi katod yang setara berbanding penggunaan partikel yang lebih kasar dengan suhu persinteran tinggi. Kesan saiz partikel ini juga dapat dilihat dalam proses impregnasi katod komposit LSCF-YSZ yang mana penggunaan serbuk nano LSCF berjaya meningkatkan kawasan sempadan tiga fasa bagi proses penurunan oksigen (Chen et al. 2008).

Hasil kajian yang telah dinyatakan menegaskan bahawa pemilihan kriteria serbuk katod komposit yang bersesuaian amat penting bagi mendapatkan prestasi komponen katod yang diinginkan.

#### PEMBENTUKAN KOMPONEN KATOD KOMPOSIT LSCF

Selain pembangunan dalam aspek bahan katod komposit SFOP, kaedah pembentukan katod juga memainkan peranan penting untuk meningkatkan prestasi sel fuel. Sebagaimana yang dirumuskan oleh Fergus et al. (2009), pembangunan teknologi katod melibatkan peningkatan pada beberapa kriteria termasuk kaedah pembentukan. Penggunaan kaedah pembentukan katod komposit LSCF yang berbeza akan mempengaruhi sifat katod yang dihasilkan. Pernyataan ini disokong oleh kajian yang telah dijalankan oleh Murray et al. (2002) dan Wang & Mogensen (2005). Kaedah semburan yang digunakan oleh Wang & Mogensen (2005) telah berjaya menghasilkan katod komposit LSCF-50%GDC dengan nilai  $R_p$  yang lebih rendah berbanding katod komposit LSCF berkomposisi sama yang dibangunkan oleh Murray et al. (2002) melalui proses penyalutan mejam.

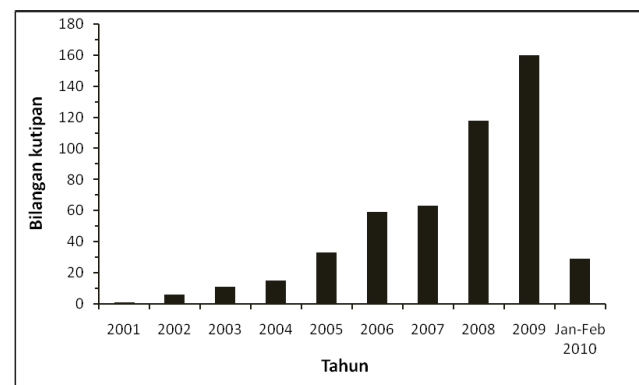
Kaedah pembentukan filem katod boleh dikategorikan kepada dua iaitu kaedah pemprosesan seramik basah (pencetakan skrin, penyalutan spin, kaedah sol-gel dan lain-lain) serta kaedah pengendapan terus (pengendapan wap elektrokimia, semburan plasma, semburan pirolisis, percikan katod dan lain-lain). Penggunaan suhu pensinteran yang rendah dalam kaedah pengendapan terus merupakan salah satu kelebihan bagi kaedah pemprosesan ini. Proses pengendapan wap elektrokimia misalnya mampu membentuk filem elektrod pada kadar pengendapan yang singkat berbanding kaedah pengendapan filem nipis yang lain. Kaedah semburan plasma pula berkeupayaan menghasilkan komposisi dan mikrostruktur yang berubah di sepanjang filem elektrod (Fergus et al. 2009). Walaupun kaedah pemprosesan seramik basah kebiasaannya menggunakan suhu pensinteran yang agak tinggi tetapi suhu ini boleh dikurangkan melalui penggunaan serbuk katod bersaiz nano (Fergus et al. 2009).

Buat masa kini, kaedah percetakan skrin merupakan kaedah yang paling banyak diguna pakai bagi penghasilan komponen katod. Kaedah ini digunakan dengan meluas dalam penghasilan SFOP berbentuk tiub (Fu et al. 2007; Hagiwara et al. 2006; Simner et al. 2007; Song et al. 2006a; Wang et al. 2007). Kaedah pembentukan seramik basah seperti percetakan skrin ini adalah teknik pembentukan katod yang mudah dan mampu menghasilkan katod dengan

nilai  $R_p$ . Ini dibuktikan oleh Fu et al. (2009) yang telah membangunkan katod komposit LSCF-SDC dengan nilai  $R_p$   $0.23 \Omega\text{cm}^2$  pada suhu  $700^\circ\text{C}$ . Walau bagaimanapun, setiap kaedah yang dinyatakan ini mempunyai kekangan seperti kesukaran untuk mendapatkan komposisi yang homogen, tidak kos efektif, sukar untuk penghasilan semula, serta kurang praktikal untuk diimplementasikan pada skala pengeluaran yang besar (Chen & Liu 2001; Fergus et al. 2009).

Sejak kebelakangan ini, proses pengendapan elektroforetik (EPD) menjadi pilihan utama dalam pembentukan filem bagi SFOP. Negishi et al. (2000) telah merumuskan beberapa kelebihan aplikasi EPD dalam SFOP di antaranya (1) salutan boleh dibuat dalam berbagai bentuk, (2) salutan berliang bagi elektrod dan salutan padat untuk elektrolit boleh dihasilkan dengan mengawal keadaan pengendapan, (3) struktur lapisan bagi elektrod dan elektrolit boleh diperolehi, (4) masa pemprosesan yang singkat, (5) peralatan pemprosesan yang ringkas dan (6) potensi untuk diaplikasikan pada pengeluaran secara pukal. Kutipan yang semakin meningkat terhadap penerbitan berkaitan EPD dalam pembentukan sel fuel menunjukkan penggunaan kaedah ini semakin mendapat perhatian para pengkaji (Rajah 7).

Kaedah EPD ini banyak digunakan untuk penghasilan filem tumpat elektrolit. Contohnya, filem nipis berliang LSGM berketebalan  $4 \mu\text{m}$  dan  $10\text{-}20 \mu\text{m}$  telah dihasilkan melalui kaedah EPD masing-masing oleh Mathews et al. (2000) dan Sora et al. (2006). Terkini, kaedah EPD telah mula diaplikasikan bagi pembentukan filem katod berliang. Walau bagaimanapun, masih terlalu sedikit hasil kajian yang dilaporkan mengenai penggunaan kaedah EPD bagi penghasilan elektrod. Berdasarkan kepada kajian kepustakaan yang telah dibuat, Santillán et al. (2009) merupakan penyelidik awal yang melaporkan penghasilan filem nipis berliang bagi katod LSCF ke atas substrat GDC pada voltan kenan  $20 \text{ V}$ . Filem katod lantanum strontium ferit (LSF) pula telah berjaya dihasilkan oleh Asamoto et al. (2009). Beliau membuktikan bahawa kaedah EPD dengan mudah mampu mengawal ketebalan filem dan menyediakan



RAJAH 7. Peningkatan Bilangan Kutipan Terhadap Jurnal Berkaitan Penggunaan EPD dalam Pembangunan Sel Fuel (kata kunci carian "fuel cell-electrophoretic deposition" dalam ISI Web of Knowledge, Thomson Reuters <http://apps.isiknowledge.com>, [www.ezplib.ukm.my](http://www.ezplib.ukm.my), 2 Mac 2010

lapisan katod yang seragam di mana ia seterusnya membantu menentukan ketumpatan kuasa sel fuel. Kesemua kaedah EPD yang dinyatakan ini menggunakan pelarut organik bagi mengelakkan elektrolisis dan mendapatkan filem yang bebas gelembung.

Walaupun begitu, sistem pelarut akueus semakin mendapat perhatian kerana berkeupayaan mengurangkan kos pemprosesan di samping penggunaan voltan kenaaan yang lebih rendah dan tiada bahaya toksik berbanding penggunaan pelarut organik. Proses EPD yang dijalankan oleh Yaseen et al. (2007) dengan penggunaan pelarut akueus telah menghasilkan filem BaTiO<sub>3</sub> setebal 1 μm pada tempoh pengendapan 2 minit dengan voltan kenaaan 3 V. Penggunaan larutan akueus bagi proses EPD memerlukan agen penyerakan partikel dan bahan tambah untuk memastikan pengendapan filem katod yang baik diperolehi (Cherng et al. 2008; Santillán et al. 2009; Zhao et al. 2006).

Oleh yang demikian, pembangunan katod komposit LSCF terutamanya melalui kaedah EPD yang menggunakan larutan berakueus menyediakan ruang kajian yang masih luas untuk penyelidikan.

#### KESIMPULAN

Merujuk kepada ulasan kajian yang telah dibuat, penyelidikan katod komposit LSCF untuk SFOP bersuhu sederhana-rendah semakin berkembang pesat. Bahan katod komposit LSCF menunjukkan prestasi dan potensi yang tinggi untuk digunakan pada suhu sederhana-rendah. Selain daripada topik yang dibincangkan dalam penulisan ini, terdapat banyak lagi ruang kosong berkaitan bahan katod komposit LSCF yang perlu dikaji. Ini termasuk kestabilan jangka panjang komposit LSCF apabila digabungkan dengan komponen sel fuel yang lain, mekanisme degradasi prestasinya, pengoptimuman parameter pemprosesan dalam kaedah pembentukan lapisan katod terhadap prestasi sel dan sebagainya. Oleh itu, skop kajian yang dinyatakan tadi menyediakan peluang dan cabaran kepada penyelidik untuk membangun dan meningkatkan kemampuan bahan katod komposit LSCF bagi SFOP bersuhu sederhana-rendah.

#### PENGHARGAAN

Penulis merakamkan penghargaan kepada Universiti Kebangsaan Malaysia di atas tajaan projek ini melalui Geran Penyelidikan Arus Perdana UKM-AP-TK-05-2009. Ucapan terima kasih juga kepada Universiti Tun Hussein Onn Malaysia dan Kementerian Pengajian Tinggi Malaysia di atas pemberian biasiswa pengajian.

#### RUJUKAN

Asamoto, M., Miyake, S., Yonei, Y., Yamaura, H. & Yahiro, H. 2009. Electrochemical Performances of Proton-Conducting SOFC with La-Sr-Fe-O Cathode Fabricated by Electrophoretic Deposition Techniques.

*Electrochemistry* 77 (2): 143-145.

- Barqué, L., Canero, A., Moreno, M. S. & Serquis, A. 2008. High performance nanostructured IT-SOFC cathodes prepared by novel chemical method. *Electrochemistry Communications* 10: 1905-1908.
- Beckel, D., Dubach, A. & Studart, A. R. 2006. Spray pyrolysis of La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> thin film cathodes. *Journal of Electroceramics* 16: 221-228.
- Besra, L. & Liu, M. 2007. A review on fundamentals and applications of electrophoretic deposition (EPD). *Progress in Materials Science* 52: 1-61.
- Chen, F. & Liu, M. 2001. Preparation of yttria-stabilized zirconia (YSZ) films on La<sub>0.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>MnO<sub>3</sub> (LSM) and LSM-YSZ substrates using an electrophoretic deposition (EPD) process. *Journal of the European Ceramic Society* 21: 127-134.
- Chen, J., Liang, F., Liu, L., Jiang, S., Chi, B., Pu, J. & Li, J. 2008. Nano-structured (La,Sr)(Co,Fe)O<sub>3</sub> + YSZ composite cathodes for intermediate temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* 183: 586-589.
- Cherng, J. S., Sau, J. R. & Chung, C. C. 2008. Aqueous electrophoretic deposition of YSZ electrolyte layers for solid oxide fuel cells. *Journal of Solid State Electrochemistry* 12 (7-8): 925-933.
- Dusastre, V. & Kilner, J. A. 1999. Optimisation of composite cathodes for intermediate SOFC applications. *Solid State Ionics* 126: 163-174.
- Doshj, Richards, V. R., Carter, J., Wang, X. & Krumpelt M. 1999. Development of solid-oxide fuel cells that operate at 500°C. *Journal of Electrochemical Society* 146: 1273-1278.
- Fergus, J. W., Hui, R., Li, X., Wilkinson, D. P. & Zhang, J. 2009. *Solid Oxide Fuel Cells Materials Properties and Performance*. New York: CRC Press.
- Fu, C., Sun, K., Zhang, N., Chen, X. & Zhou, D. 2007. Electrochemical characteristics of LSCF-SDC composite cathode for intermediate temperature SOFC. *Electrochimica Acta* 52: 4589-4594.
- Guo, W., Liu, J., Jin, C., Gao, H. & Zhang, Y. 2009. Electrochemical evaluation of La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub>-La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.8</sub>Mg<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> composite cathodes for La<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.8</sub>Mg<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> electrolyte SOFCs. *Journal of Alloys and Compounds* 473: 43-47.
- Hagiwara, A., Hobara, N., Takizawa, K., Sato, K., Abe, H. & Naito, M. 2006. Preparation and evaluation of mechanochemically fabricated LSM/ScSZ composite materials for SOFC cathodes. *Solid State Ionics* 177: 2967-2977.
- Lee, S., Song, H. S., Hyun, S. H., Kim, J. & Moon, J. 2009. Interlayer-free nanostructured La<sub>0.58</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> cathode on scandium stabilized zirconia electrolyte for intermediate-temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* 187: 74-79.
- Lee, S., Song, H. S., Hyun, S. H., Kim, J. & Moon, J. 2010. LSCF-SDC core-shell high-performance durable composite cathode. *Journal of Power Sources* 195: 118-123.



- Leng, Y. J., Chan, S. H., Jiang, S. P. & Khor, K. A. 2004. Low-temperature SOFC with thin film GDC electrolyte prepared in situ by solid-state reaction. *Solid State Ionics* 170: 9-15.
- Leng, Y., Chan, S. H. & Liu Q. 2008. Development of LSCF-GDC composite cathodes for low-temperature solid oxide fuel cells with thin film GDC electrolyte. *International Journal of Hydrogen Energy* 33: 3808-3817.
- Lin, Y. & Barnett, S. A. 2008.  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.1}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_3\text{-La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  composite cathodes for intermediate-temperature solid oxide fuel cells. *Solid State Ionics* 179: 420-427.
- Liu, B. & Zhang, Y. 2008. Status and prospects of intermediate temperature solid oxide fuel cells. *Materials* 15: 84-90.
- Mathews, T., Rabu, N., Sellar, J. R. & Muddle, B. C. 2000. Fabrication of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Ga}_{1-y}\text{Mg}_y\text{O}_{3-(x+y)/2}$  thin films by electrophoretic deposition and its conductivity measurement. *Solid State Ionics* 128: 111-115.
- Minh, N. Q. 2004. Solid oxide fuel cells technology-features and application. *Solid State Ionics* 174: 271-277.
- Murray, E. P., Sever, M. J. & Barnett, S. A. 2002. Electrochemical performance of  $(\text{La,Sr})(\text{Co,Fe})\text{O}_3\text{-(Ce,Gd)}\text{O}_3$  composites cathode. *Solid State Ionics* 148: 27-34.
- Negishi, H., Sakai, N., Yamaji, K., Horita T. & Yokokawa, H. 2000. Application of electrophoretic deposition technique to solid oxide fuel cells. *Journal of Electrochemical Society* 147: 1682-1687.
- NoorAshrina A. Hamid, Andanastuti Muchtar, Wan Ramli Wan Daud & Norhamidi Muhamad. 2009. Pencirian mikrostruktur katod La-Sr-Co-Fe-O bagi Sel Fuel Oksida Pejal Bersuhu Sederhana (IT-SOFC). *Sains Malaysiana* 38(6).
- Raj, I. A., Nesaraj, A. S., Kumar, M., Tietz, F., Buchkremer, H. P. & Stoeber, D. 2004. On the suitability of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  cathode for intermediate temperature solid oxide fuel cell (ITSOFC). *Journal of New Materials for Electrochemistry Systems* 7: 145-151.
- Ralph, J. M., Schoeler, A. C. & Krumpelt, M. 2001. Materials for lower temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Materials Science* 36: 1161-1172.
- Riess, I. 2003. Mixed ionic-electronic conductors-materials properties and applications. *Solid State Ionics* 157: 1-17.
- Santillán, M. J., Caneiro, A., Quaranta, N. & Boccaccini, A. R. 2009. Electrophoretic deposition of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  cathodes on  $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{1.95}$  substrates for intermediate temperature solid oxide fuel cell (IT-SOFC). *Journal of the European Ceramic Society* 29: 1125-1132.
- Serra, J. M., Uhlenbruck, S., Meulenberg, W. A., Buchkremer, H.P. & Stöver, D. 2006. Nano-structuring of solid oxide fuel cells cathodes. *Topics in Catalysis*. 40: 123-131.
- Shao, Z. & Haile, S. M. 2004. A high-performance cathode for the next generation of solid oxide fuel cells. *Nature* 431: 170-173.
- Simner, S. P., Anderson, M. D., Templeton, J. W. & Stevenson, J. W. 2007. Silver-perovskite composite SOFC cathodes processed via mechanofusion. *Journal of Power Sources* 168: 236-239.
- Simner, S. P., Bonnett, J. F., Canfield, K. D., Meinhardt, K. D., Shelton, J. P., Sprengle, V. L. & Stevenson J. W. 2003. Development of lanthanum ferrite SOFC cathodes. *Journal of Power Sources* 113: 1-10.
- Singhal, S. C. 2009. Solid Oxide Fuel Cell. <http://electrochem.cwru.edu/ed/encycl/> [30 Januari 2009].
- Steven, S. C. C. 2005. Catalysis of Solid Oxide Fuel Cells. *Catalysis* 18: 186-198.
- Song, H. S., Kim, W. H., Hyun, S. H. & Moon, J. 2006a. Influences of starting particulate materials on microstructural evolution and electrochemical activity of LSM-YSZ composite cathode for SOFC. *Journal of Electroceramics* 17: 759-764.
- Song, L., Xueli, S., Zhongsheng, W. & Juncai, S. 2006b. A new candidate as the cathode material for intermediate and low temperature SOFCs. *Rare Metals* 25: 213-217.
- Sora, I. N., Pelosato, R., Simone, A., Montanaro, L., Maglia, F. & Chiodelli, G. 2006. Characterization of LSGM films obtained by electrophoretic deposition (EPD). *Solid State Ionics* 177: 1985-1989.
- Tao, Y., Nishino, H., Ashidate, S., Kokubo, H., Watanabe, M. & Uchida, M. 2009. Polarization properties of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ -based double layer-type oxygen electrodes for reversible SOFCs. *Electrochimica Acta* 54: 3309-3315.
- Thydén, K. 2008. Microstructural degradation of Ni-YSZ anodes for solid oxide fuel cells. Tesis Ph.D. University of Copenhagen, Denmark.
- Viswanathan, B. & Scibioh, M. A. 2007. *Fuel Cells Principles and Applications*. India: Universities Press, CRC Press.
- Wang, W. G. & Mogensen, M. 2005. High-performance lanthanum-ferrite-based cathode for SOFC. *Solid State Ionics* 176: 457-462.
- Wang, Z., Qian, J., Cao, J., Wang, S. & Wen, T. J. 2007. A study of multilayer tape casting method for anode-supported planar type solid oxide fuel cells (SOFCs). *Journal of Alloys Compounds* 437: 264-268.
- Wincewicz, K. C. & Cooper, J. S. 2005. Taxonomies of SOFC Material and Manufacturing Alternatives. *Journal of Power Sources* 140: 280-296.
- Xia, C. & Liu, M. 2002. Novel cathodes for low temperature solid oxide fuel cells. *Advanced Materials* 14: 521-523.
- Yamamoto, O. 2000. Solid oxide fuel cells: fundamental aspects and prospects. *Electrochimica Acta* 45: 2423-2435.
- Yaseen, H., Baltianski, S. & Tsur. Y. 2007. Cathodic electrophoretic deposition of barium titanate films from aqueous solution. *Journal of Materials Science*



42: 9676-9683.

Zhang, J., Ji, Y., Gao, H., He, T. & Liu, J. 2009. Composite cathode  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}\text{Sm}_{0.1}\text{Ce}_{0.9}\text{O}_{1.95}\text{-Ag}$  for intermediate-temperature solid oxide fuel cells. *Journal of Alloys and Compounds* 395: 322-325.

Zhao, J., Wang, X. & Li, L. 2006. Electrophoretic deposition of  $\text{BaTiO}_3$  films from aqueous suspensions. *Materials Chemistry and Physics* 99: 350-353.

Hamimah Abd.Rahman, Andanastuti Muchtar & Norhamidi Muhamad  
Institut Sel Fuel, Universiti Kebangsaan Malaysia,  
43600 UKM Bangi, Selangor,

Malaysia.

Huda Abdullah  
Fakulti Kejuruteraan dan Alam Bina,  
Universiti Kebangsaan Malaysia,  
43600 UKM Bangi, Selangor,  
Malaysia.

\*Corresponding author: e-mail: muchtar@eng.ukm.my

Received: 22<sup>nd</sup> March 2010

Accepted: 15<sup>th</sup> April 2010