

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Energi listrik merupakan salah satu bentuk energi yang sangat penting bagi kehidupan manusia. Saat ini, manusia masih bergantung pada bahan bakar fosil dalam proses pembangkit energi listrik. Ketergantungan terhadap bahan bakar fosil dapat menyebabkan krisis energi di masa mendatang karena pembentukannya membutuhkan ribuan hingga jutaan tahun (Pradana dan Mubarok, 2018). Selain itu, emisi yang dihasilkan dari pembakaran bahan bakar fosil meningkat dari tahun ke tahun sehingga menyebabkan perubahan iklim. Krisis ini mendorong dilakukannya berbagai penelitian untuk menemukan metode penghasil energi tanpa bergantung pada bahan bakar fosil (Mallick *et al.*, 2016).

Selama dua dekade terakhir, *fuel cell* menjadi salah satu sistem energi terbarukan karena kemampuannya mengubah energi kimia menjadi energi listrik tanpa melibatkan proses pembakaran, sehingga polusi dan produk beracun yang dihasilkan lebih sedikit (Zakaria *et al.*, 2020). *Fuel cell* merupakan perangkat elektrokimia yang menggunakan hidrogen (atau bahan kimia berbasis hidrogen) sebagai bahan bakar yang dikombinasikan dengan oksigen untuk menghasilkan listrik, air, dan panas. Hidrogen dioksidasi di anoda, menghasilkan proton dan elektron dengan adanya katalis (biasanya Pt) (Branco *et al.*, 2016).

Fuel cell diklasifikasikan berdasarkan beberapa parameter, seperti suhu operasi dan kondisi tekanan, struktur *fuel cell*, jenis membran, jenis elektrolit, ion yang dipertukarkan, dan jenis reaktan. Umumnya, klasifikasi dibuat berdasarkan dengan elektrolit yang digunakan. Di antara berbagai jenis *fuel cell* yang sedang dikembangkan hingga sekarang, *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC) menjadi *fuel cell* yang paling menjanjikan karena dapat beroperasi pada suhu rendah, tidak mudah korosif, dan fleksibel (Kamarudin *et al.*, 2016).

Membran yang biasa digunakan untuk PEMFC adalah membran Nafion karena memiliki sifat fisik, elektrokimia, dan kestabilan mekanik yang sangat baik, serta produktivitas yang tinggi. Berdasarkan penelitian Zakaria *et al.*, pada tahun

2019, Nafion 117 memiliki konduktivitas proton yang tinggi, yakni sebesar $0,0983 \text{ S cm}^{-1}$. Namun, nilai permeabilitas metanol Nafion yang masih tinggi ($1,37 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$) dan kemungkinan terjadi penurunan konduktivitas proton pada suhu tinggi mengganggu efisiensi *fuel cell*. Selain itu, harga Nafion sangat mahal dan pengoperasiannya sulit. Oleh karena itu, banyak dilakukan penelitian alternatif pengganti Nafion. Salah satunya dengan mengembangkan membran berbasis polimer yang murah, mudah dibuat, memiliki konduktivitas proton yang tinggi, serta memiliki stabilitas termal, kimia, dan mekanik yang sangat baik (Mohy Eldin *et al.*, 2016).

Sampai saat ini, penelitian tentang polimer alam telah dilakukan pada polisakarida (pati kitosan, turunan selulosa), protein, asam polilaktat, dan polibutilen suksinat (Chen *et al.*, 2020). Selulosa menempati urutan pertama dalam kelimpahan di antara semua polimer alam. Berbagai turunan selulosa, khususnya selulosa asetat (SA) dan selulosa nitrat (SN), juga banyak digunakan (Roberson, 2019). Selulosa asetat merupakan semikristalin termoplastik yang tidak larut dalam air, tetapi dapat mengembang dengan adanya gugus hidrofilik ($-\text{OH}$) dan gugus asetil (Rana *et al.*, 2012). Keunggulan membran selulosa asetat dibandingkan dengan membran komposit film tipis yang lain adalah mudah didapatkan, harganya terjangkau, dan metode sintesisnya sederhana. Namun, kekuatan mekanik, stabilitas termal, dan permeabilitasnya harus ditingkatkan (Ghaseminezhad *et al.*, 2019).

Samaniego *et al.*, pada tahun 2020 melaporkan membran selulosa asetat (SA) cocok diaplikasikan sebagai membran *fuel cell* karena memiliki konduktivitas ion sebesar 0.093 S cm^{-1} pada suhu 70°C dan kapasitas pertukaran ion sebesar $2,15 \text{ mmol g}^{-1}$. Namun, kapasitas %*swelling* airnya lebih tinggi dari Nafion yakni sekitar 76,5%. Selulosa asetat banyak dimodifikasi secara fisiokimia melalui *cross-linking*, *grafting*, sulfonasi, aminasi, dan pembentukan komposit untuk memperluas berbagai aplikasi sebagai membran *fuel cell* (Torigoe *et al.*, 2018).

Membran SA dengan penambahan kopolimer asam 2-Akrilamido-2-metilpropana sulfonat (AMPS) yang dibuat melalui metode *grafting* memiliki konduktivitas proton sebesar $6,4 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$, kapasitas petukaran ion sebesar $6,7 \text{ meq g}^{-1}$, dan kapasitas penyerapan air sebesar 27% (Mesbah *et al.*, 2021). Pada

tahun 2021, Shalaby *et al.* mengembangkan membran polielektrolit penghantar proton berupa selulosa asetat dengan *filler* natrium 4-stirena sulfonat melalui metode *grafting*. Membran ini memiliki konduktivitas proton sebesar $4.77 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$, kapasitas pertukaran ion sebesar 2.79 meq g^{-1} , dan %*swelling* sebesar 23,78%. Berdasarkan penelitian-penelitian tersebut belum didapatkan membran PEMFC berbasis selulosa asetat yang memiliki sifat fisik dan kimia yang lebih baik dibandingkan membran Nafion.

Selain nilai konduktivitas yang baik, membran untuk aplikasi *fuel cell* juga harus memiliki ketahanan dan kestabilan yang baik agar efektif digunakan pada berbagai kondisi. Matriks polimer inert biasanya banyak digunakan untuk rancangan konduktor ionik, salah satunya yaitu grafen oksida (GO). GO memiliki kestabilan yang sangat baik, selain itu GO juga mengandung gugus fungsional teroksigenasi (-O-, -OH dan -COOH) sehingga mampu membentuk saluran untuk transport proton (Karim *et al.*, 2013).

GO merupakan material isolasi elektronik yang sangat konduktif. Kisi karbon GO terdiri dari daerah aromatik cincin benzena yang tidak teroksidasi, serta daerah dengan cincin beranggota enam alifatik yang tergantung pada tingkat oksidasi. Bidang dasarnya dilaporkan mengandung gugus hidroksil dan epoksi, sedangkan tepinya mengandung gugus hidroksil dan karboksil. Membran GO banyak diteliti karena memungkinkan untuk penyerapan air tanpa hambatan, sehingga menunjukkan afinitas untuk hidrasi, serta mengurangi *crossover* bahan bakar pada PEMFC (Bayer *et al.*, 2014).

Membran SA yang mengandung GO tersulfoansi menunjukkan sifat *antifouling*, hidrofilitas, dan kestabilan termal yang lebih baik dari membran SA murni (Zahid *et al.*, 2021). Penambahan GO dengan konsentrasi 0,6; 1,2; dan 1,8% ke dalam matriks polietersulfon tersulfonasi (SPES) menunjukkan peningkatan sifat membran seiring meningkatnya konsentrasi GO. Karakteristik membran yang paling baik ditunjukkan oleh membran SPES/GO1,8%. Membran tersebut menunjukkan konduktivitas proton $0,56 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$, kapasitas pertukaran ion 0,74 meq g^{-1} , dan kapasitas penyerapan air 23,13% (Shabani *et al.*, 2021)

Beberapa tahun terakhir, fungsionalisasi permukaan telah terbukti menjadi cara yang banyak digunakan untuk meningkatkan konduktivitas proton GO. Bahan aditif digunakan untuk meningkatkan sifat kimia, struktural, dan mekanik, serta kinerja membran polimer. Dalam literatur, banyak dilakukan proses doping menggunakan aditif yang berbeda seperti TiO_2 , TEOS, SiO_2 , asam borat, boron fosfat, dan asam fosfat untuk meningkatkan kinerja membran penukar proton. Di antaranya, TiO_2 menjadi aditif anorganik dengan sifat higroskopis yang mampu memfasilitasi pengolahan air dalam membran sehingga dapat meningkatkan konduktivitas membran (Yagizatli *et al.*, 2020). Material pendukung berbasis TiO_2 merupakan alternatif katalis untuk membran berbasis karbon dengan ketahanan terhadap korosi, kestabilan termal dan mekanik yang tinggi, serta dapat menghantarkan proton ketika menyerap air. Baru-baru ini, berbagai morfologi TiO_2 untuk aplikasi PEMFC banyak dipelajari (Ozkan *et al.*, 2020). Membran selulosa asetat terfosforilasi yang mengandung 5% TiO_2 menunjukkan kestabilan mekanik sebesar 49,9 MPa dengan kapasitas pertukaran ion sebesar $2,01 \text{ meq g}^{-1}$ pada suhu 80°C dan nilai permeabilitas metanol sebesar $0,98 \times 10^{-16} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$, lebih baik dibandingkan Nafion 117 ($1,14 \times 10^{-9} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$) (Khalifa *et al.*, 2021).

Cui *et al.*, pada tahun 2020 membuktikan membran polimer yang mengandung TiO_2 dalam GO memiliki kestabilan (kimia, termal, mekanik) dan selektivitas yang lebih baik karena interaksi elektrostatik yang kuat. Membran dengan *filler* TiO_2 -GO (TGO) mampu menurunkan nilai permeabilitas metanol dari $9,96 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ menjadi $1,17 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Selain itu, nilai konduktivitas proton dan kapasitas pertukaran ion meningkat masing-masing dari $0,13 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$ menjadi $43,85 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$ dan $0,19 \text{ mmol g}^{-1}$ menjadi $1,09 \text{ mmol g}^{-1}$.

Pada penelitian ini, dilakukan pembuatan membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 dengan variasi konsentrasi TiO_2 sebanyak (0; 0,5; 1; 1,5; 2) %. TiO_2 dimanfaatkan sebagai *filler* anorganik yang konduktif terhadap ion elektrolit pada PEMFC. Sintesis GO dilakukan menggunakan metode Hummers termodifikasi. Struktur GO hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan *Fourier Transform-Infrared* (FTIR) pada rentang bilangan gelombang $600 - 4000 \text{ cm}^{-1}$ dan *X-Ray Diffraction* (XRD) menggunakan sinar Cu $\text{K}\alpha$ ($\lambda = 0,154 \text{ nm}$) dengan rentang 2θ

antara $5^\circ - 60^\circ$ untuk mengetahui keberhasilan proses oksidasi grafit dan uji konduktivitas proton menggunakan *Electrochemical Impedance Spectroscopy* (EIS). Selulosa asetat dikarakterisasi menggunakan viskometer *Brookfield* dan FTIR. Selain itu, TiO_2 dikarakterisasi menggunakan XRD dengan rentang 2θ antara $10^\circ - 60^\circ$ untuk mengetahui fasa TiO_2 . Masing-masing membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 dikarakterisasi untuk menentukan kekuatan mekanik dan kinerjanya melalui uji *swelling*, uji tarik, uji Kapasitas Pertukaran Ion (KPI), dan uji permeabilitas metanol. Membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 yang paling optimal untuk PEMFC dikarakterisasi menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM), FTIR, dan EIS. Membran yang dibuat pada penelitian ini diharapkan memiliki kinerja yang sama atau lebih baik dari Nafion komersil.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang di atas, didapatkan rumusan masalah dari penelitian ini adalah:

1. Bagaimana pengaruh variasi TiO_2 terhadap sifat mekanik membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC)?
2. Bagaimana pengaruh variasi TiO_2 terhadap kinerja membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC)?
3. Bagaimana efektivitas membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 dibandingkan Nafion komersil sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC)?

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah:

1. Menentukan pengaruh variasi TiO_2 terhadap sifat mekanik membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC)?
2. Menentukan pengaruh variasi TiO_2 terhadap kinerja membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC).
3. Menentukan efektivitas membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 dibandingkan Nafion komersil sebagai *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC)?

1.4 Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan dapat memberi manfaat untuk perkembangan ilmu pengetahuan dan teknologi, khususnya dalam mengembangkan membran untuk aplikasi *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC). Pembuatan membran komposit selulosa asetat-GO- TiO_2 diharapkan mampu mengurangi penggunaan bahan bakar fosil dengan penggunaan materi yang ramah lingkungan.