

TUGAS AKHIR

FUNGSIONALISASI *CARBON NANOTUBE* SEBAGAI *SUPPORT* KATALIS UNTUK *PROTON EXCHANGE* *MEMBRANE FUEL CELL*



Regita Athalia

NPM: 6171901001

PROGRAM STUDI FISIKA
FAKULTAS TEKNOLOGI INFORMASI DAN SAINS
UNIVERSITAS KATOLIK PARAHYANGAN
2023

FINAL PROJECT

**FUNCTIONALIZATION OF CARBON NANOTUBES AS A
SUPPORT CATALYST FOR PROTON EXCHANGE
MEMBRANE FUEL CELLS**



Regita Athalia

NPM: 6171901001

**DEPARTMENT OF PHYSICS
FACULTY OF INFORMATION TECHNOLOGY AND SCIENCES
PARAHYANGAN CATHOLIC UNIVERSITY
2023**

LEMBAR PENGESAHAN

FUNGSIONALISASI *CARBON NANOTUBE* SEBAGAI
SUPPORT KATALIS UNTUK *PROTON EXCHANGE*
MEMBRANE FUEL CELL

Regita Athalia

NPM: 6171901001

Bandung, 11 Januari 2023

Menyetujui,

Pembimbing Pendamping

Pembimbing Utama



Elok Fidiani, Ph.D.



Arenst Andreas Arie, S.T., S.Si.,
M.Sc., Ph.D.

Ketua Tim Penguji



Philips Nicolas Gunawidjaja, Ph.D.

Anggota Tim Penguji



Hans Kristianto, S.T., M.T.

Mengetahui,

Ketua Program Studi



Reinard Primulando, Ph.D.

PERNYATAAN

Dengan ini saya yang bertandatangan di bawah ini menyatakan bahwa tugas akhir dengan judul:

FUNGSIONALISASI *CARBON NANOTUBE* SEBAGAI *SUPPORT* KATALIS UNTUK *PROTON EXCHANGE MEMBRANE FUEL CELL*

adalah benar-benar karya saya sendiri, dan saya tidak melakukan penjiplakan atau pengutipan dengan cara-cara yang tidak sesuai dengan etika keilmuan yang berlaku dalam masyarakat keilmuan.

Atas pernyataan ini, saya siap menanggung segala risiko dan sanksi yang dijatuhkan kepada saya, apabila di kemudian hari ditemukan adanya pelanggaran terhadap etika keilmuan dalam karya saya, atau jika ada tuntutan formal atau non-formal dari pihak lain berkaitan dengan keaslian karya saya ini.

Dinyatakan di Bandung,
Tanggal 11 Januari 2023



Regita Athalia
NPM: 6171901001

ABSTRAK

Proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) merupakan teknologi bersih yang menjadi alternatif di masa depan untuk mencapai target *zero emission*. Namun, tingginya biaya produksi PEMFC masih menjadi kendala utama dalam pemasaran kendaraan berbasis hidrogen khususnya di Indonesia. Untuk itu perlu alternatif penggunaan sumber daya alam lokal yang murah dan melimpah seperti biomassa. Pada penelitian ini, dilakukan optimasi penggunaan *carbon nanotube* (CNT) yang dibuat dari biomassa sebagai alternatif *support* katalis pada PEMFC. Fungsionalisasi dengan menggunakan campuran asam dilakukan untuk memodifikasi struktur permukaan, dengan demikian katalis platinum (Pt) dapat tertanam di permukaannya. Uji karakterisasi fisis *thermogravimetric analysis* (TGA) menunjukkan keberhasilan penanaman Pt pada CNT hingga 45% dan 35% pada sampel Pt-1/CNT dan Pt-2/CNT. Uji karakterisasi menggunakan *fourier transform infrared spectroscopy* (FTIR) telah menunjukkan adanya perubahan *fingerprint* dari CNT yang telah difungsionalisasi dan CNT yang belum difungsionalisasi. Uji *x-ray diffraction* (XRD) juga telah mengkonfirmasi keberhasilan terbentuknya struktur kristal dari Pt pada CNT. Selanjutnya, peningkatan kinerja pada Pt/CNT diamati pada uji analisis tambahan *in-situ* pada *fuel cell* dan menunjukkan transportasi massa yang lebih baik daripada Pt/C.

Kata-kata kunci: Karbon, katalis, CNT, PEMFC, *support* katalis.

ABSTRACT

Proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) is a clean technology which is an alternative in the future to achieve zero emission targets. However, the high production cost of PEMFC is still a major challenge for the successful marketing of hydrogen fuel cell vehicles, especially in Indonesia. For this reason, it is necessary to use alternative local natural resources that are cheap and abundant, such as biomass. This study aims to optimize the use of carbon nanotubes (CNT) made from biomass as an alternative catalyst support for PEMFC. Functionalization using an acid mixture was carried out to modify the surface structure, thus the platinum (Pt) catalyst can be embedded on the surface. The physical characterization using thermogravimetric analysis (TGA) showed the successful Pt catalyst attachment on CNTs up to 45% and 35% on the samples of Pt-1/CNT and Pt-2/CNT. The physical characterizations using Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) have shown a change in the fingerprint of functionalized CNTs and unfunctionalized CNTs. X-ray diffraction (XRD) tests have also confirmed the successful formation of the crystal structure of Pt on CNTs. Furthermore, the improved performance of Pt/CNTs was observed in an additional in-situ analysis test on the fuel cell and showed better mass transport than Pt/C.

Keywords: Carbon, catalyst, CNT, PEMFC, support catalyst.

*Tugas akhir ini saya persembahkan untuk keluarga dan orang-orang
terdekat saya*

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur penulis panjatkan kepada Tuhan yang telah memberikan berkat, rahmat dan karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan tugas akhir ini dengan baik. Tugas akhir ini dibuat sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Sains di Fakultas Teknologi Informasi dan Sains Universitas Katolik Parahyangan dan sebagai bukti nyata dalam mewujudkan pengembangan institusi dalam bidang penelitian. Penulis menyadari dalam penyusunan tugas akhir ini tidak terlepas dari bantuan berbagai pihak yang telah memberikan bimbingan dan arahan yang berguna bagi penulis. Oleh karena itu pada kesempatan ini penulis ingin menyampaikan terima kasih sebesar-besarnya kepada semua pihak yang telah membantu dalam penelitian dan penyusunan skripsi ini:

1. Tuhan Yang Maha Esa atas anugerah-Nya penulis selalu diberikan semangat, kekuatan, kemudahan dan kelancaran dalam mengerjakan tugas akhir ini.
2. Kedua orang tua penulis yang telah mendidik, mendoakan, mendukung dan membiayai penulis dari lahir hingga saat ini.
3. Adik penulis yang selalu mendukung, mendoakan dan menghibur.
4. Ibu Elok Fidiani, Ph.D., selaku dosen pembimbing utama yang selalu memberi masukan dan nasihat agar tugas akhir dapat diselesaikan dengan baik.
5. Bapak Arenst Andreas Arie, S.T., S.Si., M.Sc., Ph.D., selaku dosen pembimbing kedua yang memberi saran untuk penulisan tugas akhir.
6. Bapak Philips Nicolas Gunawidjaja, Ph.D. dan Hans Kristianto, S.T., M.T. selaku dosen penguji yang memberikan masukan dan nasihat agar tugas akhir ini dapat diselesaikan dengan baik.
7. Bapak dan Ibu Dosen Program Studi Fisika yang telah mendidik dan memberikan penulis ilmu pengetahuan dan pengalaman yang bermanfaat bagi kehidupan sehari-hari.
8. Pembimbing dan peneliti di Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN) yang banyak membantu dan memberikan saran bagi penulis selama melakukan penelitian.
9. Seluruh karyawan TU FTIS yang menuntun dalam proses administrasi.
10. Dekanat FTIS UNPAR.
11. Amira Putri Hudiya dan Clementine Fernanda Sunandar yang selalu membantu dan mememani selama perkuliahan, memberikan masukan dan semangat agar dapat menyelesaikan pendidikan Sarjana.
12. Robin Irawan selaku teman penelitian selama 6 bulan di Badan Riset dan Inovasi Nasional yang selalu membantu, memberi dorongan dan mendukung penulis.
13. Rekan-rekan kerja PM FTIS periode 2021 yang telah menjadi rekan kerja penulis selama satu tahun.

14. Rekan-rekan kepengurusan Himpunan Mahasiswa Program Studi Fisika Periode 2021 yang telah mendukung dan mewarnai kehidupan perkuliahan penulis.
15. Rekan-rekan mahasiswa penerima beasiswa Jabar Future Leader 2019 yang telah menjadi rekan kerja untuk setiap proyek beasiswa.
16. Teman-teman mahasiswa Program Studi Fisika yang tidak bisa penulis sebutkan satu persatu yang telah memberikan semangat dan dukungan dalam penulisan penelitian ini.
17. Alumni Program Studi Fisika.
18. Seluruh pihak yang telah membantu baik secara langsung maupun tidak langsung dan memberi dukungan, bantuan sehingga tugas akhir ini dapat terselesaikan.

Bandung, Januari 2023

Penulis

DAFTAR ISI

KATA PENGANTAR	xv
DAFTAR ISI	xvii
DAFTAR GAMBAR	xix
DAFTAR TABEL	xxi
1 PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	4
1.3 Tujuan	4
1.4 Batasan Masalah	4
1.5 Metodologi	4
1.6 Sistematika Pembahasan	4
2 STUDI LITERATUR	7
2.1 Material Katalis pada PEMFC	7
2.2 <i>Support</i> Material pada Katalis	9
3 METODE PENELITIAN	15
3.1 Bagan Alur Penelitian	15
3.2 Tempat Penelitian	16
3.3 Alat dan Bahan	16
3.3.1 Bahan	16
3.3.2 Alat Utama	16
3.4 Prosedur Penelitian	16
3.4.1 Fungsionalisasi CNT	16
3.4.2 Sintesis Katalis	17
3.4.3 Karakterisasi Katalis	17
3.4.4 <i>Testing Fuel Cell</i>	18
4 HASIL DAN PEMBAHASAN	19
5 KESIMPULAN DAN SARAN	25
5.1 Kesimpulan	25
5.2 Saran	25
DAFTAR REFERENSI	27

DAFTAR GAMBAR

1.1	Jenis-jenis polusi yang menyebabkan <i>fatality rate</i> di Indonesia pada tahun 2017 [1].	1
1.2	Skema PEMFC [2].	2
1.3	(a) <i>Stack</i> PEMFC [3], dan (b) Sketsa susunan MEA pada PEMFC [4].	3
1.4	Biaya pembuatan <i>stack</i> PEMFC [5].	3
2.1	Struktur dari <i>catalyst layer</i> pada katoda [6].	8
2.2	<i>Volcano plot</i> dari beberapa logam murni untuk aktivitas (A) HOR [7] dan (B) ORR [8].	8
2.3	Skema aglomerasi dan pelepasan Pt dari permukaan <i>support</i> material [9].	9
2.4	Perbandingan uji ketahanan korosi katalis katoda yang berbeda-beda [10].	10
2.5	Pola XRD dari setiap katalis (a) sebelum <i>annealing</i> dan (b) sesudah <i>annealing</i> [11].	10
2.6	IV <i>polarization curve</i> dari MEA dengan katalis Pt/CB, Pt/GC dan Tanaka [11].	11
2.7	Pola XRD dari (a) <i>as-prepared</i> Pt/C, anoda MEA-a (Pt/CB), katoda MEA-a (Pt/CB), anoda MEA-b (Pt/CB), dan (b) katoda MEA-b (Pt/CNT) [12].	11
2.8	Ukuran Pori pada <i>Carbon</i> [13].	12
2.9	Berbagai jenis CNT: (A) SWCNT, (B) DWCNT, dan (C) MWCNT [14].	12
2.10	Proses fungsionalisasi CNT dengan menggunakan campuran asam HNO ₃ dan H ₂ SO ₄ [15].	13
3.1	Alur Penelitian	15
3.2	Langkah-langkah fungsionalisasi CNT.	17
3.3	Langkah-langkah sintesis katalis pada CNT.	17
3.4	<i>Stack Fuel Cell</i> .	18
4.1	Hasil TGA dan dTG dari 4 sampel yang telah dibuat selama penelitian ini berlangsung.	19
4.2	Hasil FTIR CNT yang tidak di fungsionalisasi dan sudah difungsionalisasi oleh asam dengan hasil TGA paling baik (~45 wt%).	21
4.3	Hasil XRD dari <i>carbon black</i> Vulcan XC-72R, CNT, Pt-1/C dan Pt-1/CNT yang memiliki hasil TGA terbaik.	22
4.4	Hasil IV <i>Polarization Curve</i> dari Pt-1/CNT dan Pt/C Komersial.	23

DAFTAR TABEL

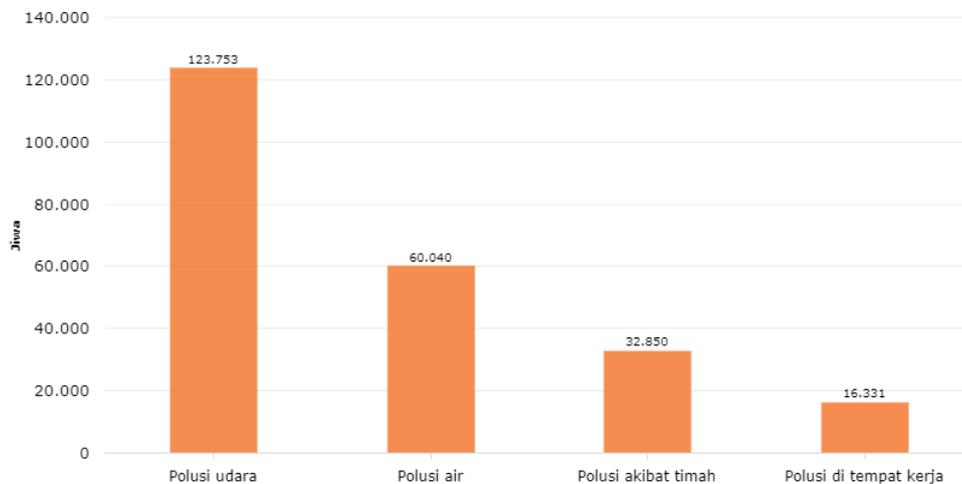
4.1	Data sampel yang telah dibuat.	20
-----	----------------------------------------	----

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

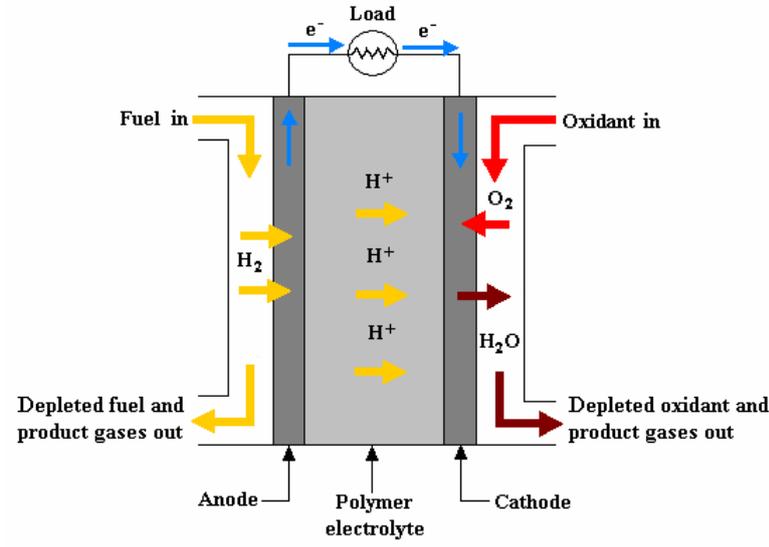
Dalam beberapa dekade terakhir, penggunaan bahan bakar fosil terus meningkat seiring bertambahnya peminatan di sektor transportasi. Perubahan iklim dan pemanasan global merupakan hal yang paling dirasakan dari dampak penggunaan bahan bakar fosil terus menerus. Banyaknya transportasi yang digunakan memberikan kontribusi lebih dari 80% terhadap total konsumsi penggunaan bahan bakar fosil dan bertanggung jawab atas peningkatan emisi gas rumah kaca [16]. Polusi udara yang dihasilkan dari sektor transportasi menjadi salah satu masalah lingkungan terbesar di Indonesia. Pada tahun 2017 menurut katadata, *fataliti rate* akibat tingginya polusi udara di Indonesia mencapai lebih dari seratus ribu orang sebagaimana ditunjukkan pada gambar 1.1 [1].



Gambar 1.1: Jenis-jenis polusi yang menyebabkan *fataliti rate* di Indonesia pada tahun 2017 [1].

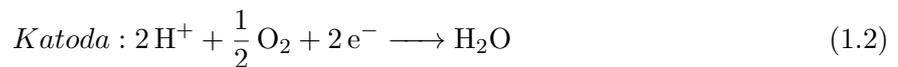
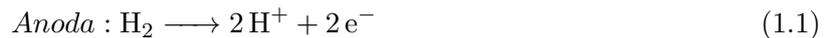
Masalah serupa diyakini tidak hanya terjadi di Indonesia saja, tetapi juga hampir seluruh negara di dunia. Hal ini mendorong transisi global penggunaan energi bersih dan ramah lingkungan khususnya di bidang transportasi. Saat ini, penggunaan kendaraan listrik berbasis baterai sudah semakin populer karena efisiensinya yang cukup baik dan juga harganya yang cukup kompetitif [17]. Selain itu, penggunaan baterai sebagai teknologi penggerak utama kendaraan listrik diyakini mampu mengurangi emisi beracun seperti CO dan CO₂ yang dihasilkan oleh kendaraan berbahan bakar fosil. Namun, ada beberapa keterbatasan yang dihadapi oleh teknologi ini, yaitu waktu pengisian daya yang cukup lama dan juga efisiensi serta keterbatasan baterai untuk digunakan pada alat transportasi besar seperti bus, kereta dan pesawat terbang yang mana merupakan alat transportasi vital di Indonesia. *Fuel cell* hadir sebagai solusi alternatif untuk menyelesaikan kekurangan ini sekaligus dapat mengurangi penggunaan bahan bakar fosil. *Fuel cell* merupakan perangkat elektrokimia yang dapat mengubah energi kimia secara langsung menjadi energi listrik.

Pada sektor transportasi, *proton exchange membrane fuel cell* (PEMFC) merupakan solusi ideal karena memiliki daya yang tinggi, efisiensi konversi yang tinggi, *start-up* yang cepat dan ramah lingkungan. PEMFC dirancang untuk dapat memproduksi listrik dari penyediaan bahan bakar hidrogen (H_2). Konversi energi kimia menjadi listrik pada PEMFC memanfaatkan reaksi antara H_2 dan O_2 seperti pada gambar 1.2.

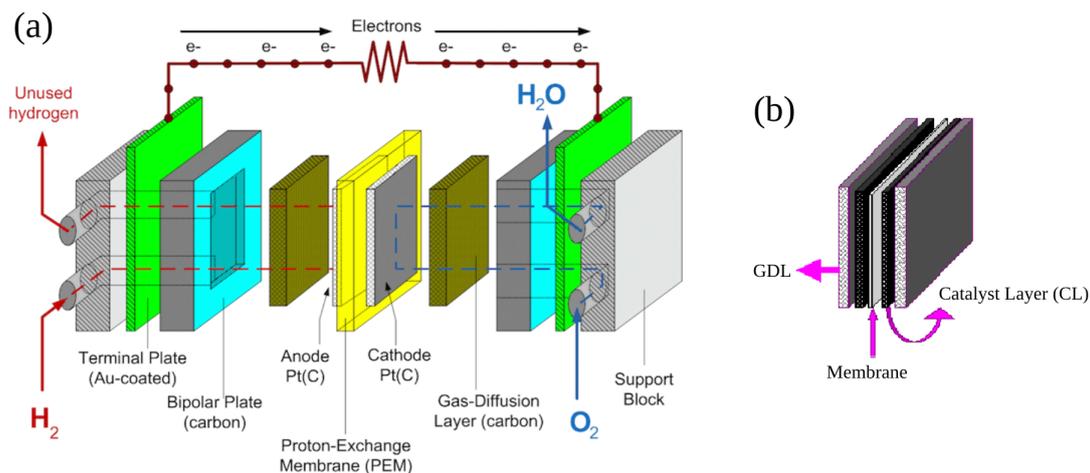


Gambar 1.2: Skema PEMFC [2].

Gas H_2 akan disalurkan ke *fuel cell* dimana H_2 akan dioksidasi dan membentuk proton (H^+) dan elektron (e^-) pada anoda *fuel cell* [18]. Elektron akan diangkut melalui sirkuit eksternal dan memberikan daya pada kendaraan. Sedangkan proton (H^+) akan diangkut melalui elektrolit untuk dapat mencapai katoda yang selanjutnya akan bereaksi dengan elektron dan O_2 . Dari proses tersebut, O_2 akan direduksi menjadi air (H_2O) yang merupakan produk akhir dari reaksi H_2 dan O_2 [19]. Reaksi elektrokimia dan reaksi total dari *fuel cell* dapat dijabarkan sebagai berikut:

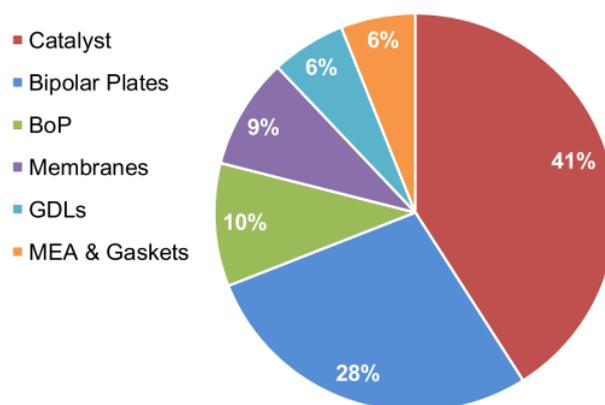


Pada umumnya, *stack* PEMFC tersusun seperti pada gambar 1.3a dimana anoda dan katoda akan mengapit membran dan susunan tersebut disebut *membrane electrode assembly* (MEA). MEA merupakan bagian yang paling penting pada PEMFC yang terdiri dari: membran, GDL + *catalyst layers* (GDE) pada anoda dan katoda [20] seperti pada gambar 1.3b. Membran yang diapit oleh anoda dan katoda memiliki peran untuk dapat mencegah bercampurnya gas H_2 yang bersentuhan dengan anoda dan O_2 yang bersentuhan dengan katoda. Dalam susunan *fuel cell*, satu sel MEA ditempatkan di antara *bipolar plate* dan *end plate* dengan saluran untuk memungkinkan reaktan mengalir melalui permukaan MEA.



Gambar 1.3: (a) *Stack* PEMFC [3], dan (b) Sketsa susunan MEA pada PEMFC [4].

PEMFC menghasilkan energi dengan mengubah bahan bakar yang tersedia, hal tersebut yang membedakan PEMFC dengan baterai yang menyimpan energi kemudian langsung digunakan. Selain itu, baterai membutuhkan waktu pengisian ulang yang lebih lama daripada PEMFC [17]. Hidrogen pada PEMFC memiliki energi yang lebih padat daripada baterai yang dapat membuat teknologi ini menjadi lebih ringan. Namun hingga saat ini, PEMFC masih dianggap terlalu mahal untuk dapat bersaing dengan baterai karena menghabiskan biaya yang produksi yang lebih tinggi. Pada tahun 2018, US *department of energy* telah memperkirakan rincian biaya produksi katalis PEMFC mencapai \$1166,52 untuk membuat 1000 produk katalis [21]. Hal tersebut telah mengidentifikasi bahwa biaya produksi katalis berkontribusi secara signifikan terhadap total biaya jika dibandingkan dengan *bipolar plates*, membran, GDL, MEA dan gasket yang ditunjukkan pada gambar 1.4. Biaya produksi katalis dapat dikaitkan dengan biaya pemrosesan bahan yang menyebabkan katalis Pt khusus menjadi beberapa kali lebih mahal dibandingkan dengan logam Pt yang tidak diolah. Hal tersebut yang menjadi kendala terbesar pemasaran kendaraan berbasis *fuel cell* di pasaran.



Gambar 1.4: Biaya pembuatan *stack* PEMFC [5].

Katalis PEMFC selama ini terbuat dari platinum pada karbon sebagai penyangga (Pt/C) yang menyebabkan biaya pembuatannya menjadi lebih mahal. Pengurangan penggunaan platinum (Pt) dan juga optimasi sumber daya lokal dapat mengurangi biaya PEMFC khususnya di Indonesia. Perlu adanya modifikasi katalis yang selama ini dibuat dengan menggunakan Pt agar dapat mengurangi biaya pembuatannya, salah satu caranya adalah dengan menggunakan campuran Pt dengan Nikel (Ni) yang pernah diteliti oleh Molmen, dkk [22]. Indonesia merupakan penghasil Ni terbesar, sehingga kombinasi Pt dan Ni dapat digunakan sebagai katalis PEMFC. Selain menggunakan

kombinasi tersebut, di Indonesia banyak sekali biomassa yang dapat dimanfaatkan untuk membuat support material baru untuk menggantikan *support material carbon black nanoparticles* yang selama ini telah digunakan. Biomassa yang berada di Indonesia dapat dibuat menjadi *carbon alotrop* seperti *carbon nanotube* (CNT) yang selanjutnya dapat digunakan sebagai *support material* pengganti. CNT yang telah dimodifikasi sudah dipelajari oleh Chiang, dkk [23] dan dapat digunakan sebagai *support material* karena memiliki keunggulan seperti konduktivitas termal dan listriknya. Namun, CNT yang disintesis dari biomassa perlu dioptimalkan agar dapat digunakan dengan baik sebagai *support material* pada katalis PEMFC yang menjadi topik utama dari penelitian ini.

1.2 Rumusan Masalah

Tugas akhir ini memiliki rumusan masalah sebagai berikut:

- Bagaimana pengaruh properti CNT sebagai *support* katalis untuk PEMFC ?
- Bagaimana fungsionalisasi pada CNT berpengaruh pada properti CNT serta interaksinya dengan Pt katalis ?

1.3 Tujuan

Tujuan dari penelitian ini adalah:

1. Memodifikasi dan fungsionalisasi struktur CNT sebagai *support* katalis;
2. Mempelajari pengaruh *support material* dan struktur katalis terhadap ORR melalui analisis *in-situ* pada *fuel cell*

1.4 Batasan Masalah

Penelitian ini difokuskan pada pengaruh fungsionalisasi CNT sebagai *support* katalis pada PEMFC. Agar tidak menyimpang dari permasalahan yang diteliti maka permasalahan akan dibatasi:

1. Penelitian ini dilakukan untuk mengetahui hasil fungsionalisasi CNT menggunakan asam klorida (HCl), serta campuran asam nitrat (HNO₃) dan asam sulfat (H₂SO₄).
2. *Support material* yang digunakan selama penelitian ini adalah vulcan xc-72r dan *carbon nanotube*.

1.5 Metodologi

Metode dalam penelitian ini yaitu dengan cara melakukan fungsionalisasi pada CNT dengan menggunakan campuran asam dengan berbagai metode. Hasil dari fungsionalisasi CNT kemudian akan dilanjutkan ke proses penanaman Pt pada CNT. Hasil sintesis yang dibuat selanjutnya akan melalui uji karakterisasi fisis dan uji tambahan elektrokimia.

1.6 Sistematika Pembahasan

1. Bab 1 Pendahuluan
Terdiri dari latar belakang, rumusan masalah, tujuan penelitian, batasan masalah, manfaat penelitian, metodologi dan sistematika pembahasan.

2. Bab 2 Studi Literatur
Berisi beberapa teori yang digunakan dalam penulisan tugas akhir. Teori yang digunakan berkaitan dengan material katalis pada PEMFC dan *support* material pada katalis.
3. Bab 3 Metode Penelitian
Berisi tentang metode penelitian yang menjelaskan bagan alur penelitian, tempat penelitian, alat dan bahan yang digunakan, serta prosedur penelitian.
4. Bab 4 Hasil dan Pembahasan
Berisi mengenai hasil penelitian dan pembahasan dari uji karakterisasi fisis *thermogravimetric analysis*, *fourier transform infrared spectroscopy*, *x-ray diffraction*, serta uji elektrokimia *in-situ* pada *fuel cell* sebagai uji tambahan pada penelitian ini.
5. Bab 5 Kesimpulan dan Saran
Berisi kesimpulan dan saran hasil pembahasan.

