



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**PENGEMBANGAN KINERJA *POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE*  
*FUEL CELL* MELALUI FABRIKASI *MEMBRANE ELECTRODE*  
*ASSEMBLY* DENGAN *CARBON NANOTUBE* SEBAGAI PENYANGGA  
KATALIS**

**SKRIPSI**

**DEWI ANGGRAINI  
0606076255**

**FAKULTAS TEKNIK  
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA  
DEPOK  
JULI 2010**



UNIVERSITAS INDONESIA

HALAMAN JUDUL

**PENGEMBANGAN KINERJA *POLYMER ELECTROLYTE*  
*MEMBRANE FUEL CELL* MELALUI FABRIKASI  
*MEMBRANE ELECTRODE ASSEMBLY* DENGAN *CARBON*  
*NANOTUBE* SEBAGAI PENYANGGA KATALIS**

**SKRIPSI**

**Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh  
gelar Sarjana Teknik Kimia**

**DEWI ANGGRAINI**

**0606076532**

**FAKULTAS TEKNIK UNIVERSITAS INDONESIA**

**PROGRAM SARJANA**

**DEPOK**

**JULI 2010**

## HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk telah saya nyatakan dengan benar.

Nama : Dewi Anggraini

NPM : 0606076255

Tanda Tangan :

Tanggal : 5 Juli 2010

## HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh :  
Nama : Dewi Anggraini  
NPM : 0606076255  
Program Studi : Teknik Kimia  
Judul Skripsi : Pengembangan Kinerja *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* melalui Fabrikasi *Membrane Electrode Assembly* dengan *Carbon Nanotube* sebagai Penyangga Katalis

Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik pada Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia.

### DEWAN PENGUJI

Pembimbing : Prof. Dr. Ir. Widodo Wahyu Purwanto, DEA ( )

Penguji : Ir. Mahmud Sudibandriyo, MSc, PhD ( )

Penguji : Dr.rer.nat. Ir. Yuswan Muharam, MT ( )

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 5 Juli 2010

## KATA PENGANTAR



Puji dan syukur saya panjatkan ke Tuhan YME atas berkat dan rahmat-Nya sehingga saya dapat menyelesaikan skripsi ini tepat pada waktunya. Skripsi ini disusun untuk melengkapi persyaratan untuk meraih gelar Sarjana Teknik di Departemen Teknik Kimia pada Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Selain itu, skripsi ini diharapkan dapat menambah pengetahuan pembaca tentang penggunaan *carbon nanotube* dan pengaruhnya terhadap kinerja *fuel cell*. Selain itu, semoga skripsi ini dapat menjadi masukan untuk pengembangan *fuel cell* di Indonesia. Dalam kesempatan ini penulis ingin mengucapkan terimakasih kepada semua pihak yang telah membantu selama proses penulisan skripsi ini, yaitu:

1. Bapak Prof. Dr. Ir. Widodo W. Purwanto, DEA. selaku pembimbing skripsi di Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia (DTK FTUI) atas bimbingan, ilmu, waktu, dan saran dalam pembuatan skripsi ini.
2. Ibu Dr. Verina J. Wargadalam dan Bapak Ir. Harun Al Rasyid selaku pembimbing selama di Laboratorium Pusat Penelitian dan Pengembangan Tenaga Kelistrikan dan Energi Baru Terbarukan (P3TKEBT) atas bimbingan, ilmu, diskusi dan nasehatnya dalam pembuatan makalah skripsi ini.
3. Bapak Ir. Yuliusman, M.Eng selaku koordinator skripsi. Ibu Ir. Praswasti Pembangun Diah Kencana Wulan, MT selaku pembimbing akademis. Para dosen DTK FTUI yang telah membimbing dan memberikan ilmu yang sangat berguna.
4. Keluarga di rumah yang telah memberikan kasih sayang, dukungan, dan doa.
5. Karnanim, untuk semua dukungan dan perhatiannya.

6. Ferry Catur, Fikri Ibrahim, Ahmad Yasir, dan Prolessa yang telah memberi dukungan dan kehangatan dari laboratorium POT dan RPKA.
7. Kang Jajat dan Mang Ijal, Mas Opik, Mas Sri, Mas Eko, Mas Mughni, Mas Her, Mas Rinan, Mbak Yanti, Mbak Ita, serta seluruh karyawan DTK UI atas bantuannya dalam administrasi dan perlengkapan skripsi.
8. Debie Ari, Ayu Dahliyanti, Astrid Fatimah, Siti Fauziyah, Rahmawati Lestari, Farhanah, dan Witta Kartika atas persahabatan dan persaudaraanya.
9. Agrian Peby, Hadi Yahya, Hanani Fisafarani, dan Nita Handayani selaku tim satu bimbingan, terima kasih atas bantuan dan kerjasamanya.
10. Seluruh teman – teman GP 2006 atas dukungan dan persahabatanya.
11. Kak Danu, Mas Bono, Pak Arfi, Mbak Silvi, dan Mbak Lisa dari P3TKEBT atas bantuannya selama penelitian
12. Serta semua pihak yang telah mebanu penyusunan skripsi ini baik secara langsung ataupun tidak langsung.

Semoga Tuhan YME membalas kebaikan dan bantuan yang telah diberikan. Penulis menyadari bahwa masih terdapat banyak kekurangan dalam skripsi ini, oleh sebab itu kritik dan saran yang membangun sangat penulis harapkan untuk pengembangan penelitian dalam skripsi ini

Depok, 5 Juli 2010

Dewi Anggraini

**HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI  
TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS**

---

Sebagai sivitas akademika Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama : Dewi Anggraini

NPM : 0606076255

Program Studi : Teknik Kimia

Departemen : Teknik Kimia

Fakultas : Teknik

Jenis Karya : Skripsi

Demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif (Non-exclusive Royalty-Free Right)** atas karya ilmiah saya yang berjudul:

**Pengembangan Kinerja *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* Melalui  
Fabrikasi MEA Dengan *Carbon Nanotube* sebagai Penyangga Katalis**

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/format-kan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok

Pada tanggal : 5 Juli 2010

Yang menyatakan

(Dewi Anggraini)

## ABSTRAK

Nama : Dewi Anggraini  
Program Studi : Teknik Kimia  
Judul : Pengembangan Kinerja *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* melalui Fabrikasi *Membrane Electrode Assembly* dengan *Carbon Nanotube* sebagai Penyangga Katalis

Saat ini, dunia sedang mengalami krisis energi dan lingkungan akibat menipisnya cadangan bahan bakar fosil dunia dan polutan yang dihasilkan pembakaran bahan bakar fosil. Salah satu solusi yang potensial untuk mengatasi masalah-masalah tersebut adalah penerapan teknologi *polymer electrolyte membrane fuel cell* (PEMFC). Namun, pemanfaatan PEMFC secara massal masih mengalami banyak kendala, antara lain harga katalis Pt yang mahal dan usia pemakaian PEMFC yang masih rendah. Salah satu faktor penyebab rendahnya usia PEMFC adalah terjadinya degradasi pada karbon penyangga katalis yang digunakan. Saat ini, solusi yang paling menjanjikan dari permasalahan tingginya harga katalis tanpa menurunkan kinerja PEMFC adalah penerapan teknik *sputtering* untuk mendeposisikan katalis platina pada penyangga karbon. Sementara itu, degradasi pada karbon penyangga katalis dapat diatasi dengan mengganti penyangga katalis *carbon black* Vulcan XC 72 dengan *carbon nanotube* (CNT) yang lebih tahan terhadap lingkungan korosif. Selain mengatasi masalah degradasi, penggunaan CNT juga dapat menurunkan *loading* katalis Pt karena luas permukaan efektifnya yang lebih tinggi. Luas area MWNT yang digunakan dalam penelitian ini adalah 500 m<sup>2</sup>/gr, sementara luas *carbon black* Vulcan XC72 adalah 250 m<sup>2</sup>/gr. Penelitian ini mengkombinasikan aplikasi CNT sebagai penyangga katalis dan teknik deposisi *sputtering* untuk mengoptimalkan kinerja dan memperpanjang usia pemakaian PEMFC.

Penelitian ini terdiri dari 3 tahap utama, yakni fabrikasi *membrane electrode assembly* (MEA), set up sistem PEMFC, dan uji kinerja single cell PEMFC. Hasil yang diharapkan dari penelitian ini adalah terbentuknya *prototype* PEMFC dengan kinerja yang lebih baik dan usia pemakaian yang lebih panjang dari hasil-hasil penelitian sebelumnya. *Power density* maksimum yang dihasilkan MEA CNT – *sputtering* adalah 12,57 mW/cm<sup>2</sup>. Hasil tersebut masih lebih rendah dari *power density* maksimum yang dihasilkan MEA komersial, yaitu 98,36 mW/cm<sup>2</sup>. Hal tersebut disebabkan rendahnya jumlah katalis Pt yang terdeposisi pada MEA. Namun, kelekatan *carbon paper* dan membran Nafion pada MEA CNT – *sputtering* lebih kuat sehingga pengelupasan *carbon paper* tidak terjadi setelah pengujian selama 6 jam dengan DC Electronic Load.

**Kata Kunci :** *fuel cell*, PEMFC, CNT, *sputtering*



## ABSTRACT

Name : Dewi Anggraini  
Study Program: Chemical Engineering  
Judul : Improvement of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell Performance Through Membrane Electrode Assembly Fabrication using Carbon Nanotube as Catalyst Support

At present, the world is facing an energy crisis due to the declining reserve of fossil fuel and the environmental damage that is caused by the combustion of it. One of the most potential solution for the crisis is the application of polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) technology. Unfortunately, the mass application of PEMFC is still limited due to the high price of platinum catalyst and PEMFC's short lifetime that is caused by the degradation of carbon catalyst support. Application of *sputtering* technology in the catalyst deposition is one of the best solution to overcome the high cost of platinum. Meanwhile, degradation of the catalyst support can be overcome by the usage of carbon nanotube (CNT) to replace the conventional Vulcan XC72 carbon support. CNT has more resistance to acid environment, thus more resistant to corrosion. Moreover, CNT can reduce the catalyst loading due the high effective surface area. Therefore, this research combined the application of *sputtering* technology and the usage of CNT as catalyst support to optimize PEMFC performance and increase its lifetime.

This research consists of three main step, i.e. the fabrication of membrane electrode assembly (MEA), set up of PEMFC system, and single cell PEMFC performance test. The expected result of this research is the fabrication of a better PEMFC prototype with longer lifetime than the previous researches. The maximum power density result of the CNT – *sputtering* MEA is 12,57 mW/cm<sup>2</sup>. Meanwhile, the maximum power density of commercial MEA is 98,36 mW/cm<sup>2</sup>. The low amount of Pt that deposited in the MEA is the main reason for this low power density. However, the MEA's resistance to the peeling of carbon paper after 6 hours test in DC Electronic Load is increasing.

**Keyword:** *fuel cell*, PEMFC, CNT, *sputtering*

## DAFTAR ISI

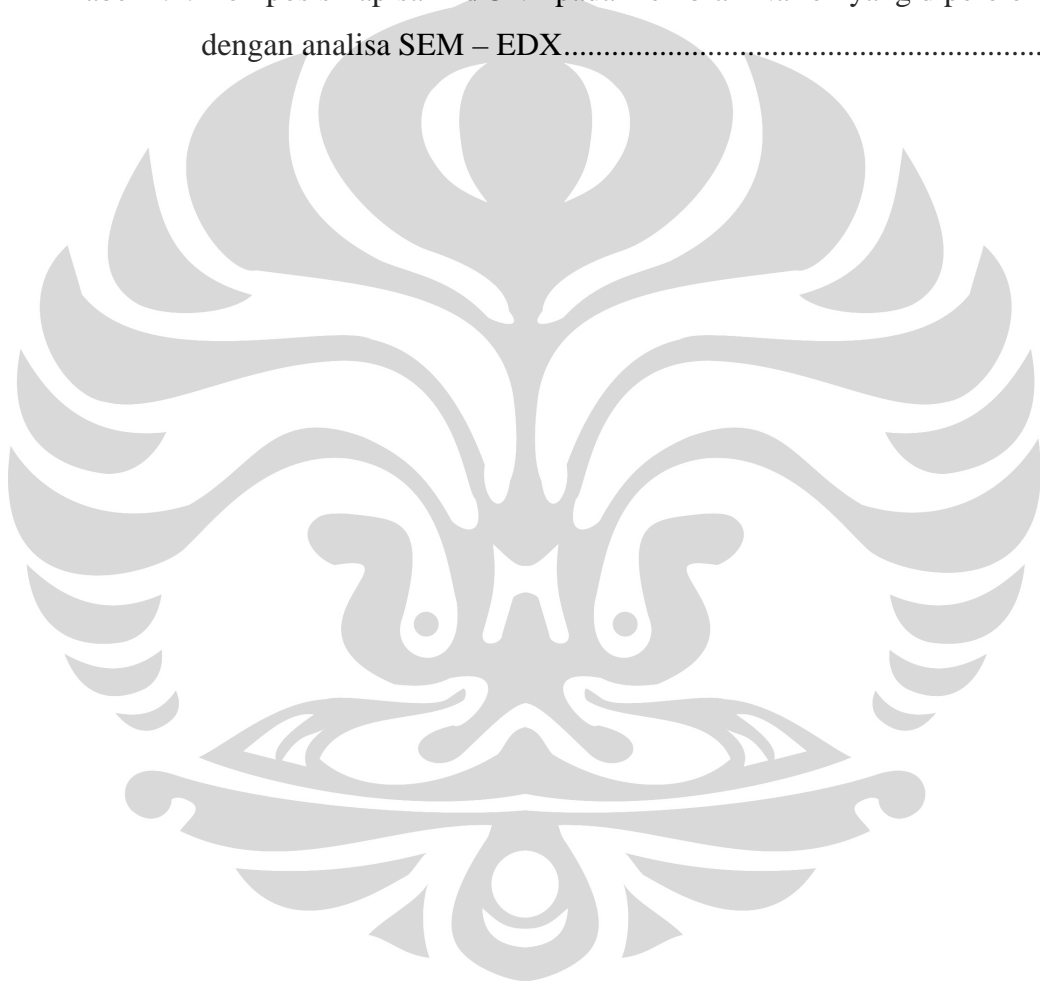
HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
KATA PENGANTAR .....	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI.....	vi
ABSTRAK .....	vii
ABSTRACT.....	viii
DAFTAR ISI.....	ix
DAFTAR TABEL.....	xii
DAFTAR GAMBAR .....	xiii
DAFTAR SINGKATAN .....	xv
DAFTAR SIMBOL.....	xvi
BAB 1 .....	1
PENDAHULUAN .....	1
1.1.    LATAR BELAKANG .....	1
1.2.    RUMUSAN MASALAH.....	4
1.3.    TUJUAN PENELITIAN.....	5
1.4.    RUANG LINGKUP MASALAH .....	5
1.5.    SISTEMATIKA PENULISAN .....	6

BAB 2 .....	7
TINJAUAN PUSTAKA .....	7
2.1. FUEL CELL.....	7
2.1.1. KELEBIHAN DAN KEKURANGAN FUEL CELL.....	7
2.1.2. JENIS-JENIS FUEL CELL.....	10
2.1.3. PRINSIP KERJA FUEL CELL .....	11
2.1.4. EFISIENSI FUEL CELL .....	12
2.1.5. KURVA POTENSIAL – DENSITAS ARUS SEBAGAI PARAMETER KINERJA PEMFC.....	13
2.2. POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELL (PEMFC) 15	
2.2.1. STRUKTUR PEMFC .....	15
2.3. TEKNIK DEPOSISI SPUTTERING.....	22
2.4. CARBON NANO TUBE (CNT) .....	24
2.4.1. DESKRIPSI CARBON NANO TUBE.....	24
2.4.2. PENGGUNAAN CNT SEBAGAI CATALYST SUPPORT PADA PEMFC.....	27
2.4.3. DEPOSISI PENYANGGA KATALIS CNT DENGAN METODE FILTRASI .....	31
BAB 3 .....	33
METODOLOGI PENELITIAN.....	33
3.1 RANCANGAN PENELITIAN.....	33
3.2. RINCIAN KEGIATAN PENELITIAN .....	35
3.2.1. PREPARASI MEMBRAN .....	35
3.2.2. FUNGSIONALISASI CNT .....	36
3.2.3. DEPOSISI KATALIS DENGAN METODE KOLOIDAL.....	36
3.2.4. DEPOSISI KATALIS DENGAN METODE SPUTTERING.....	38
3.2.5. SINTESIS GDL .....	40
3.2.6. HOT PRESSING.....	41

3.2.8. SET UP SISTEM DAN UJI KINERJA FUEL CELL (UJI SATU SEL)	41
.....	41
BAB 4 .....	43
HASIL DAN PEMBAHASAN.....	43
4.1. ANALISA METODE KOLOIDAL.....	43
4.2. ANALISA METODE SPUTTERING .....	45
4.3. HASIL UJI SATU SEL.....	45
4.4. KEREKATAN CARBON PAPER PADA MEA .....	49
4.5. PERBANDINGAN DENGAN MEA KOMERSIAL .....	50
4.6. HASIL UJI X RAY DIFFRACTION (XRD) .....	51
4.7. HASIL UJI SCANNING ELECTRON MICROSCOPY (SEM).....	52
BAB 5 .....	55
KESIMPULAN DAN SARAN.....	55
5.1. KESIMPULAN .....	55
5.2. SARAN .....	55
DAFTAR REFERENSI .....	57
LAMPIRAN.....	61
Lampiran 1. Data Polarisai DC E-Load.....	61
Lampiran 2. Perhitungan Ukuran Kristal Pt.....	62
Lampiran 3. Data Analisa XRD .....	63
Lampiran 4. Data Analisa SEM - EDX.....	70

## DAFTAR TABEL

Tabel 1.1. Beberapa penelitian mengenai keunggulan CNT sebagai penyangga katalis .....	3
Tabel 2.1. Overpotential loss yang terjadi pada fuel cell, sebagaimana yang ditunjukkan pada Gambar 2.3. ....	15
Tabel 4.1. Komposisi lapisan Pt/CNT pada membran Nafion yang diperoleh dengan analisa SEM – EDX.....	53



## DAFTAR GAMBAR

Gambar 1.1. Konsumsi energi total dunia pada tahun 2006 (EIA, 2008).....	1
Gambar 2.1. Perbandingan Efisiensi Fuel Cell dengan Mesin Konvensional ....	8
Gambar 2.2. Diagram skematik single cell PEMFC berbahan bakar H <sub>2</sub> beserta reaksinya (Carrette et al., 2001).....	11
Gambar 2.3. Kurva Potensial – Densitas Arus pada Fuel Cell H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> yang beroperasi pada T = 80 <sup>0</sup> C dan 3 atm .....	14
Gambar 2.4. Fuel cell stack (Yuan et.al., 2005).....	16
Gambar 2.5. Jenis-jenis lajur aliran: (a) serpentine channel, (b) parallel channel, (c) parallel serpentine channel, (d) discontinuous channels, (e) spiral channel geometry .....	17
Gambar 2.6. Diagram skematik struktur MEA. BP – bipolar plate; GDL – gas diffusion layer; ACL – lapisan katalis anoda; CCL – lapisan katalis katoda; PEM – membran penukar proton (Shen, 2008)...	18
Gambar 2.7. Boundary layer yang terbentuk antara partikel katalis, ionomer, dan fasa gas (Carrette et al., 2001) .....	21
Gambar 2.8. Skema proses sputter deposition (Litster et.al., 2004) .....	23
Gambar 2.9. Bentuk-bentuk alotrop karbon (intan, grafit, fullerene) dan CNT. (O’Connell, 2006).....	25
Gambar 2.10. Armchair, zig-zag, dan chiral SWNT (O’Connell, 2006).....	26
Gambar 2.11. CNT dengan dispersi katalis (Budevski, 2003).....	28
Gambar 2.12. IBRL pada elektroda .....	28
Gambar 2.13. Metode modifikasi orientasi CNT dengan filtrasi (Kannan, 2009) .....	32
Gambar 3.1. Diagram alir penelitian .....	34
Gambar 3. 2. Proses Pencucian Membran Nafion .....	35

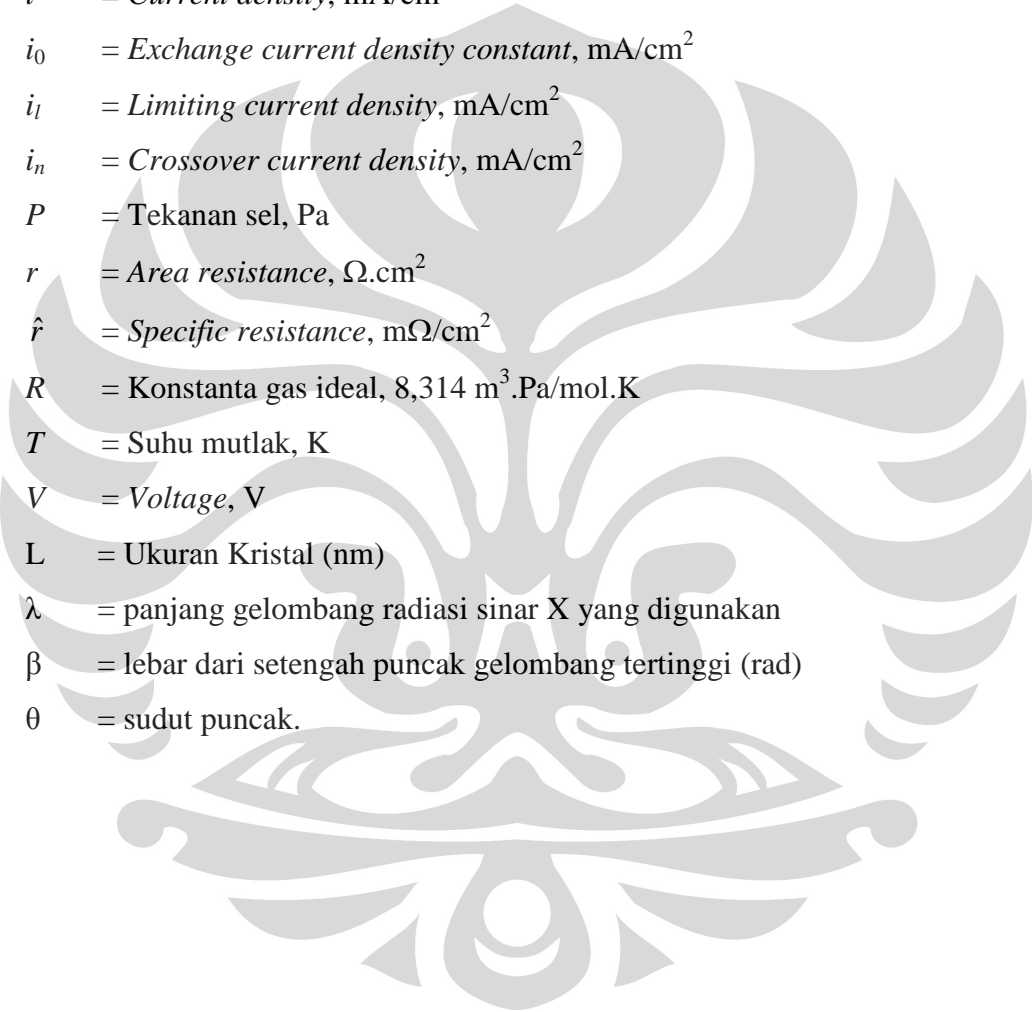
Gambar 3.3. Deposisi katalis pada CNT dengan metode koloidal .....	38
Gambar 3. 4 Peralatan Sputtering Anatech <sup>®</sup> Hummer <sup>®</sup> .....	39
Gambar 3.5. GDL yang telah di-spray dengan slurry PTFE-Carbon Black .....	40
Gambar 3. 1 Alat Hot Press CARVER (P3TKEBT).....	41
Gambar 3. 7. Foto Fuel cell dan Sistem Pengujian (P3TKEBT) .....	42
Gambar 4.1. Penyaringan CNT yang telah diimpregnasi Pt dengan metode koloidal .....	43
Gambar 4.2. Kondisi kertas saring polikarbonat sebelum (kiri) dan sesudah (kanan) hot pressing dengan membran Nafion.....	44
Gambar 4.3. Pt/CNT yang berpindah ke membran Nafion.....	45
Gambar 4.4. Kurva polarisasi hasil uji satu sel.....	46
Gambar 4.2. Kurva polarisasi MEA CNT – koloidal .....	48
Gambar 4.3. Kurva power density .....	48
Gambar 4.4. Kondisi MEA sebelum (kiri) dan sesudah (kanan) pengujian dengan DC Electronic Load .....	49
Gambar 4.5. Kurva polarisasi MEA CNT – sputtering dan MEA komersial untuk jumlah katalis yang sama.....	50
Gambar 4.6. Hasil uji XRD untuk sampel CNT-sputtering (merah) dan CNT-koloidal (biru) .....	51
Gambar 4.7. Morfologi Pt/CNT pada membran Nafion untuk sampel MEA CNT – sputtering (atas) dan MEA CNT – koloidal (bawah) .....	52
Gambar 4.8. Morfologi Pt/CNT pada sampel MEA CNT – koloidal hasil penelitian di P3TKEBT (kiri) dan MEA CNT – koloidal hasil penelitian internasional (kanan) (Li et al., 2005).....	53

## DAFTAR SINGKATAN

CNT	= <i>Carbon nanotube</i>
CVD	= <i>Chemical Vapor Deposition</i>
ECSA	= <i>Electrochemical Active Surface Area</i>
EW	= <i>Equivalent Weight</i>
GDE	= <i>gas diffusion electrode</i>
GDL	= <i>Gas Diffusion Layer</i>
IBRL	= <i>integrated breathing reaction layer</i>
MEA	= <i>Membrane Electrode Assembly</i>
mTorr	= <i>mili Torr</i>
MWNT	= <i>Multi walled carbon nanotube</i>
OCV	= <i>Open Circuit Voltage</i>
ORR	= <i>Oxygen Reduction Reaction</i>
P3TKEBT	= Pusat Penelitian dan Pengembangan Teknologi Ketenagalistrikan dan Energi Baru Terbarukan
PEM	= <i>Polymer Electrolyte Membrane</i>
PEMFC	= <i>Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell</i>
PFSA	= <i>perfluorosulfonic acid</i>
PTFE	= <i>Polytetrafluoro Ethane</i> atau Teflon <sup>®</sup>
RF	= <i>Radio Frequency</i>
SEM	= <i>Scanning Electron Microscopy</i>
SWNT	= <i>Single walled carbon nanotube</i>
XRD	= <i>X-Ray Diffraction</i>
XRF	= <i>X-Ray Fluorescence</i>



## DAFTAR SIMBOL



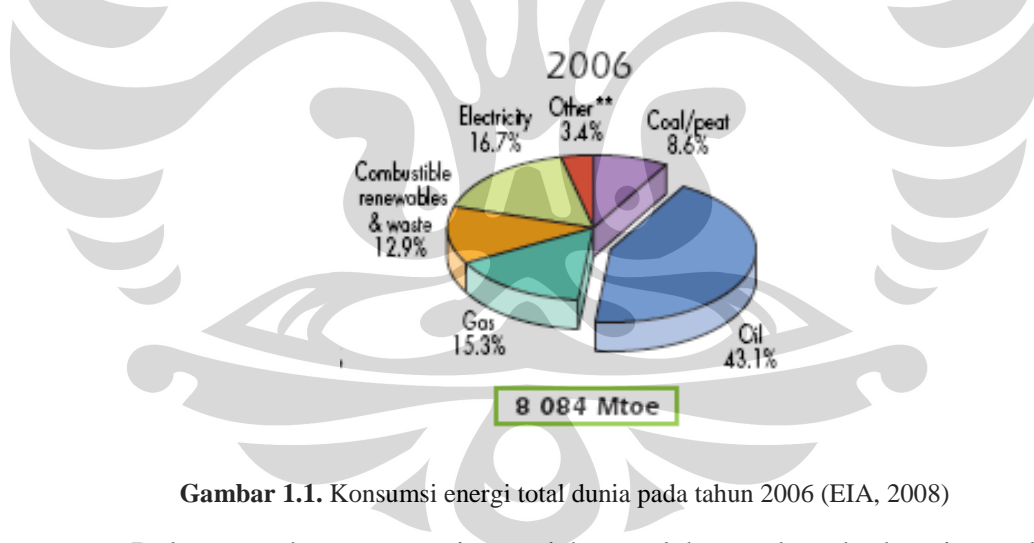
$\text{\AA}$	= Angstrom
$\alpha$	= <i>Charge transfer coefficient, unitless</i>
$\Delta V$	= Penurunan tegangan sel ( <i>Overpotentials</i> ), mV
$F$	= Konstanta Faraday, 96.500 Coulomb/mol
$i$	= <i>Current density, mA/cm<sup>2</sup></i>
$i_0$	= <i>Exchange current density constant, mA/cm<sup>2</sup></i>
$i_l$	= <i>Limiting current density, mA/cm<sup>2</sup></i>
$i_n$	= <i>Crossover current density, mA/cm<sup>2</sup></i>
$P$	= Tekanan sel, Pa
$r$	= <i>Area resistance, <math>\Omega \cdot \text{cm}^2</math></i>
$\hat{r}$	= <i>Specific resistance, <math>\text{m}\Omega/\text{cm}^2</math></i>
$R$	= Konstanta gas ideal, 8,314 $\text{m}^3 \cdot \text{Pa}/\text{mol} \cdot \text{K}$
$T$	= Suhu mutlak, K
$V$	= <i>Voltage, V</i>
$L$	= Ukuran Kristal (nm)
$\lambda$	= panjang gelombang radiasi sinar X yang digunakan
$\beta$	= lebar dari setengah puncak gelombang tertinggi (rad)
$\theta$	= sudut puncak.

# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1. LATAR BELAKANG

Saat ini, dunia mengalami ketergantungan yang amat besar terhadap bahan bakar fosil. Gambar 1.1. menunjukkan bahwa pada tahun 2006, bahan bakar fosil yang berbentuk minyak bumi, gas, dan batu bara memenuhi 80,9 % kebutuhan energi dunia (IEA, 2008). Namun, penggunaan bahan bakar fosil secara masif yang telah dilakukan umat manusia telah mengakibatkan persediaan bahan bakar tersebut semakin menipis. Selain itu, penggunaan bahan bakar fosil juga menghasilkan berbagai macam emisi yang berbahaya bagi keseimbangan lingkungan. Permasalahan energi dunia pun semakin pelik dengan bertambahnya jumlah penduduk yang mengakibatkan naiknya konsumsi energi. *Energy Information Administration* telah memprediksi bahwa konsumsi energi dunia akan meningkat sebesar 50 % antara tahun 2005 hingga 2030 (EIA, 2008).



Gambar 1.1. Konsumsi energi total dunia pada tahun 2006 (EIA, 2008)

Dalam rangka mengatasi masalah-masalah tersebut, berbagai penelitian telah dilakukan untuk mengeksplorasi energi alternatif pengganti bahan bakar fosil. Salah satu bentuk sumber energi yang potensial untuk mengatasi permasalahan energi adalah *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* (PEMFC). Penggunaan PEMFC memiliki beberapa keunggulan dibandingkan sumber energi maupun *fuel cell* jenis lainnya, antara lain efisiensinya yang jauh melebihi mesin pembakaran biasa (Carrette et al., 2001), emisinya yang ramah lingkungan karena

berupa air, kondisi operasinya yang berada pada suhu relatif rendah sehingga aman digunakan untuk kebutuhan rumah tangga, sensitivitasnya yang rendah terhadap perubahan orientasi sehingga sesuai digunakan pada kendaraan (Dhathathreya et al., 2009) dan lain-lain.

Walaupun demikian, penggunaan PEMFC sebagai sumber energi massal masih memiliki beberapa kendala. Hingga saat ini, kendala terbesar dalam penggunaan PEMFC adalah mahalannya harga katalis platina (Pt) yang digunakan (Haug et al., 2002). Salah satu teknik yang dapat digunakan untuk mengoptimalkan penggunaan katalis Pt adalah teknik deposisi katalis dengan metode *sputtering*. Metode *sputtering* dapat menghasilkan coating katalis yang lebih merata dari metode brush coating yang biasa dilakukan sehingga loading katalis dapat dikurangi tanpa menurunkan kinerja *fuel cell* (Haug et al., 2002). Hirano et al. melapiskan suatu film tipis Pt 50 nm ke permukaan GDL untuk mengurangi *loading* Pt hingga sepersepuluh *loading* awal tanpa mengurangi kinerja *fuel cell* (Hirano et al., 1997).

Selain harga katalis, kendala lain yang menghalangi komersialisasi *fuel cell* adalah degradasi katalis Pt berpenyangga karbon (*carbon supported Pt, Pt/C*) yang disebabkan oleh korosi karbon penyangga. Degradasi tersebut membatasi umur pemakaian *fuel cell* sehingga keekonomian *fuel cell* semakin rendah. Salah satu cara yang dapat digunakan untuk membatasi degradasi karbon penyangga pada *fuel cell* adalah penggunaan *carbon nano tube* (CNT) sebagai penyangga katalis (Wang et al., 2008). Selain mengatasi masalah degradasi, penggunaan CNT juga dapat menurunkan loading katalis Pt (Tang et al., 2007) dan meningkatkan ketahanan *fuel cell* terhadap peracunan katalis oleh CO (Tanaka et al., 2009).

Beberapa publikasi lain yang telah membuktikan keunggulan CNT sebagai penyangga katalis terangkum dalam Tabel 1.1.

**Tabel 1.1.** Beberapa penelitian mengenai keunggulan CNT sebagai penyangga katalis

Peneliti	Tahun	Metode	Hasil
Wang, et.al.	2004	MWNT (multi-wall nanotube) ditumbuhkan secara langsung pada elektrode dengan menggunakan katalis Co. Pt dideposisikan secara bertahap pada MWNT dengan proses electrodeposition.	Luas area elektrode mencapai 120 m <sup>2</sup> /g CNT. Hasil percobaan menunjukkan bahwa MWNT terhubung secara elektrik dengan carbon paper dan memiliki kelekatan amat erat dengan carbon paper.
Girishkumar, et.al.	2005	Lapisan film SWNT (single-wall nanotube) dan Pt dideposisikan pada elektrode dengan metode electrophoretic deposition.	Power density maksimum yang dicapai dengan elektrode Pt/SWNT hampir 20% lebih tinggi dari yang dicapai oleh elektrode Pt/Carbon Black.
Villers.et.al.	2006	MWNT (multi-wall nanotube) ditumbuhkan secara langsung pada elektrode dengan menggunakan katalis Co-Ni. Pt dideposisikan secara bertahap pada MWNT dengan proses electrodeposition.	PEMFC yang disintesis dengan MWNT memiliki kinerja yang jauh lebih baik dari elektrode komersial dalam reaksi oksidasi oksigen (ORR).
Reddy, et.al.	2007	Katalis Pt dideposisikan pada SWNT yang telah difungsionalisasi dengan aseton, kemudian ditambahkan larutan Nafion dan didispersikan pada membran dengan metode <i>spin-coating</i> .	Katalis Pt terdispersi dengan lebih merata dengan diameter kristal 3-5 nm. MEA dengan Pt/SWNT menghasilkan performa lebih baik dari MEA komersial karena transport elektron yang lebih baik serta penggunaan Pt yang lebih baik.

Li, et.al.	2005	Katalis Pt dideposisikan pada MWNT dengan menggunakan metode koloidal. Selanjutnya, Pt/MWNT difilter dengan kertas saring nylon hidrofilik sehingga terorientasi tegak lurus terhadap kertas saring. Pt/MWNT yang telah tersusun kemudian ditransfer ke membran dengan <i>hot pressing</i> .	MEA dengan Pt/CNT yang terorientasi menunjukkan performa yang lebih baik dari MEA dengan Pt/CNT tak terorientasi dan MEA dengan Pt/C. Metode filtrasi meningkatkan penggunaan katalis dan transportasi massa sehingga Pt/CNT terorientasi menghasilkan kinerja lebih baik.
------------	------	--	--

Dari berbagai metode penelitian mengenai penggunaan CNT untuk PEMFC, metode filtrasi (Li, et.al., 2005) memiliki keunggulan dalam hal kemudahan dan biaya yang rendah. Dengan metode tersebut, CNT tetap dapat diorientasikan tegak lurus terhadap membran seperti CNT yang diproduksi pada carbon paper menggunakan metode CVD yang relatif sulit dan lebih mahal. CNT yang tegak lurus terhadap membran dapat menghasilkan transportasi massa yang lebih baik pada MEA (Li et.al., 2005) dan luas area aktif yang lebih besar (Wang, et.al, 2003). Luas area MWNT yang digunakan dalam penelitian ini adalah 500 m<sup>2</sup>/gr, sementara luas carbon black Vulcan XC72 adalah 250 m<sup>2</sup>/gr. Jika dikombinasikan dengan metode *sputtering* untuk deposisi katalis, metode tersebut diharapkan dapat menghasilkan MEA dengan performa dan daya tahan yang baik dengan penggunaan katalis Pt yang optimal. Oleh karena itu, penelitian ini dilakukan dengan mengkombinasikan metode filtrasi CNT dan metode deposisi katalis dengan *sputtering*.

## 1.2. RUMUSAN MASALAH

Tingginya jumlah katalis yang digunakan untuk fabrikasi MEA memperbesar biaya pembuatan *fuel cell* untuk aplikasi komersial. Hal ini dapat disebabkan oleh luas permukaan karbon penyangga yang rendah sehingga luas bidang kontak antara partikel katalis dengan reaktan rendah. Akibatnya, jumlah katalis yang diperlukan untuk mencapai suatu kinerja tertentu menjadi tinggi.

Permasalahan lain yang timbul pada penggunaan *fuel cell* sebagai sumber energi adalah rendahnya usia *fuel cell* yang dihasilkan. Hal tersebut dapat disebabkan oleh degradasi pada karbon penyangga katalis platina akibat lingkungan kerja PEMFC yang korosif. CNT memiliki luas area spesifik yang besar sehingga luas bidang kontak katalis-reaktan lebih tinggi jika dibandingkan dengan luas bidang kontak pada *carbon black* yang biasa digunakan sebagai penyangga katalis pada *fuel cell*. Oleh karena itu, *loading* katalis yang diperlukan untuk mencapai suatu kinerja tertentu pada PEMFC dengan CNT lebih rendah dari PEMFC dengan *carbon black*. Selain itu, CNT memiliki struktur yang lebih tertutup dari *carbon black* sehingga lebih sulit untuk diserang oleh atom-atom oksidan dan lebih sulit terdegradasi.

### 1.3. TUJUAN PENELITIAN

Tujuan penelitian ini adalah untuk menurunkan *loading* katalis tanpa menurunkan kinerja *fuel cell* serta memperpanjang usia pemakaian *fuel cell* dengan cara mengubah penyangga katalis dari *carbon black* Vulcan XC 72 menjadi *carbon nano tube*.

### 1.4. RUANG LINGKUP MASALAH

Ruang lingkup permasalahan yang akan dibahas pada tulisan ini adalah sebagai berikut.

1. Sel bahan bakar (*fuel cell*) yang dibuat dalam penelitian ini berupa *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* (PEMFC).
2. Fabrikasi *Membrane Electrode Assembly* (MEA) mengacu pada penelitian sebelumnya (Wahyudi, 2005) dengan modifikasi pada jenis karbon penyangga yang digunakan, yaitu *carbon nanotube* (CNT). Variasi lain yang dilakukan adalah metode fabrikasi MEA dengan menggunakan metode filtrasi CNT yang dikombinasikan dengan teknik *sputtering*.
3. Kinerja *fuel cell* dievaluasi dengan uji sel tunggal.

## 1.5. SISTEMATIKA PENULISAN

Sistematika penulisan dalam makalah ini adalah sebagai berikut:

### Bab I : PENDAHULUAN

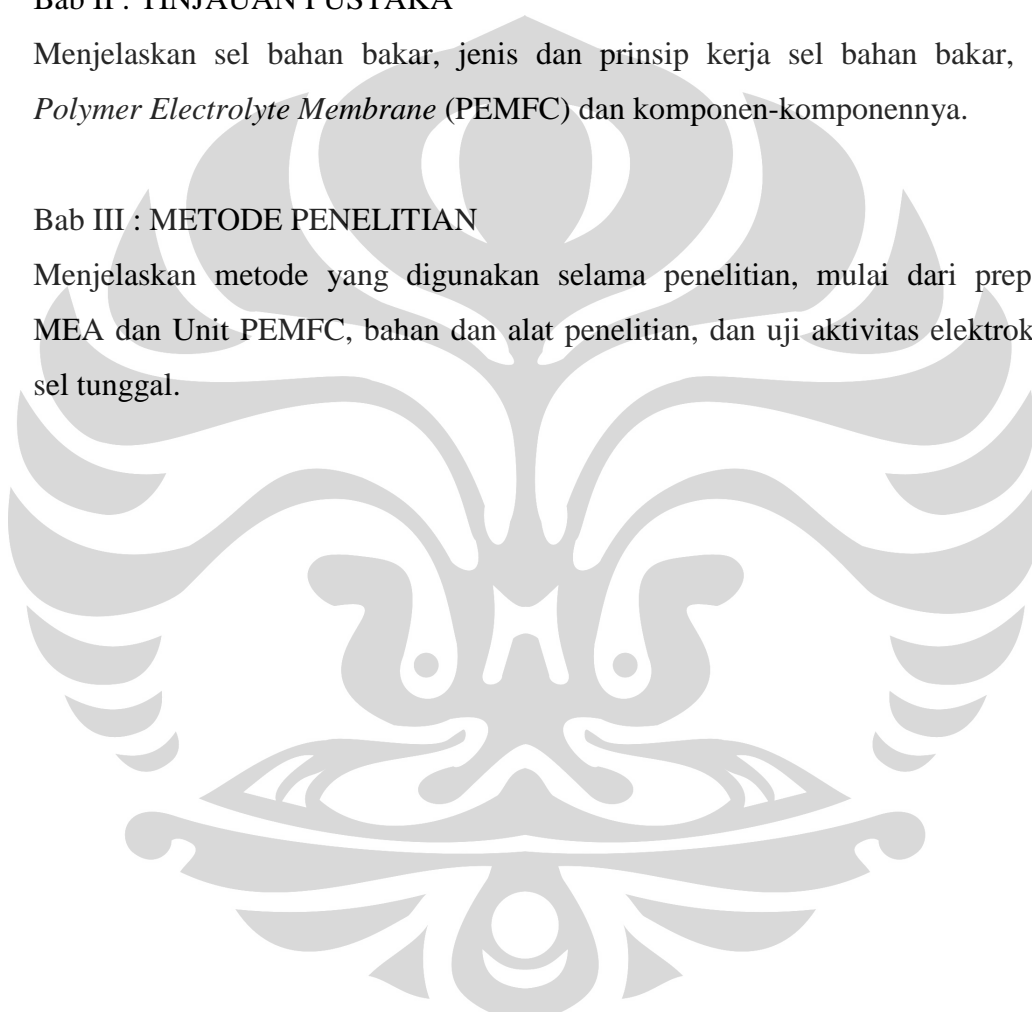
Menjelaskan latar belakang permasalahan, perumusan masalah, tujuan penelitian, ruang lingkup permasalahan, dan sistematika penulisan.

### Bab II : TINJAUAN PUSTAKA

Menjelaskan sel bahan bakar, jenis dan prinsip kerja sel bahan bakar, serta *Polymer Electrolyte Membrane* (PEMFC) dan komponen-komponennya.

### Bab III : METODE PENELITIAN

Menjelaskan metode yang digunakan selama penelitian, mulai dari preparasi MEA dan Unit PEMFC, bahan dan alat penelitian, dan uji aktivitas elektrokimia sel tunggal.



## BAB 2

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1. FUEL CELL

*Fuel cell* merupakan suatu bentuk sel elektrokimia yang dapat menghasilkan energi listrik dari energi kimia. Pengembangan *fuel cell* sebagai suatu sistem konverter energi dimulai oleh Sir William Grove pada pertengahan abad ke-19 (Bossel, 2000).

##### 2.1.1. KELEBIHAN DAN KEKURANGAN *FUEL CELL*

###### 2.1.1.1. Kelebihan

###### a) Tidak Mengeluarkan Emisi Berbahaya (*Zero Emission*)

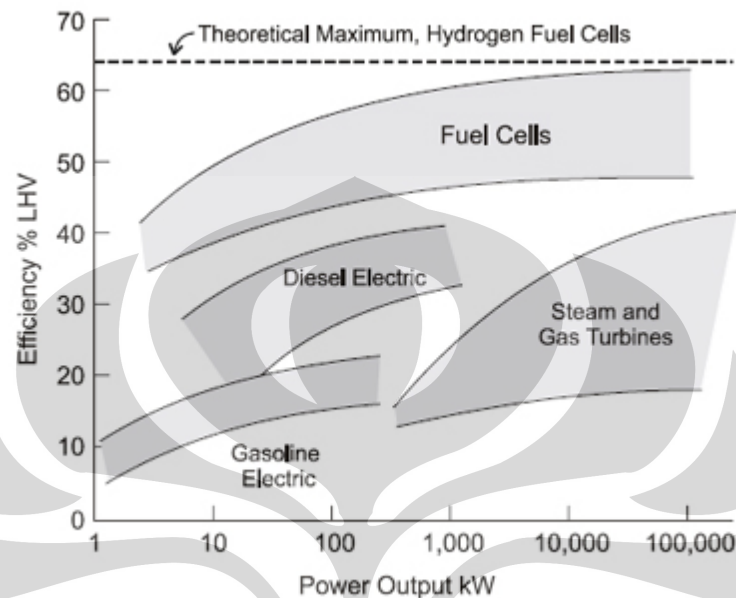
Sebuah sistem *fuel cell* hanya akan menghasilkan emisi berupa uap air apabila bahan bakar yang digunakan berupa hidrogen murni. Namun, jika bahan bakar yang digunakan berupa hidrogen hasil *reforming* hidrokarbon, maka uji emisi harus dilakukan untuk menentukan apakah sistem tersebut masih dapat dikategorikan *zero emission*. Menurut standar yang dikeluarkan *United Technologies Corporation* (UTC) pada tahun 2002, maka sebuah sistem *fuel cell* dapat dikategorikan *zero emission* ketika mengeluarkan emisi pencemar udara yang sangat rendah, dengan kriteria sbb:  $\text{NO}_x \leq 1 \text{ ppm}$ ,  $\text{SO}_2 \leq 1 \text{ ppm}$ , dan  $\text{CO}_2 \leq 2 \text{ ppm}$  (UTC, 2002). Selain itu, sistem *fuel cell* juga tidak mengeluarkan suara (polusi suara minimum), kecuali suara dari beberapa peralatan pendukung seperti pompa, kipas, kompresor, dll.

###### b) Efisiensi Tinggi (*High efficiency*)

Karena *fuel cell* tidak menggunakan proses pembakaran dalam konversi energi, maka efisiensinya tidak dibatasi oleh batas maksimum temperatur operasional (tidak dibatasi oleh efisiensi siklus Carnot). Hasilnya, efisiensi konversi energi pada *fuel cell* melalui reaksi elektrokimia lebih tinggi



dibandingkan efisiensi konversi energi pada mesin kalor konvensional yang melalui reaksi pembakaran. Gambar 2.1. menunjukkan efisiensi fuel cell dibandingkan dengan mesin konversi energi lainnya.



**Gambar 2.1.** Perbandingan Efisiensi *Fuel Cell* dengan Mesin Konvensional

c) Cepat Mengikuti Perubahan Pembebanan (*Rapid Load Following*)

*Fuel cell* memperlihatkan karakteristik yang baik dalam mengikuti perubahan beban. Sistem *Fuel cell* yang menggunakan hidrogen murni dan digunakan pada sebagian besar peralatan mekanik (contohnya motor listrik) memiliki kemampuan untuk merespon perubahan pembebanan dengan cepat.

d) Temperatur Operasional Rendah

Sistem *polymer electrolyte membrane fuel cell* (PEMFC) sangat baik diaplikasikan pada industri otomotif yang beroperasi pada temperatur rendah. Keuntungannya adalah *fuel cell* hanya memerlukan sedikit waktu pemanasan (*warmup time*), risiko operasional pada temperatur tinggi berkurang, dan efisiensi termodinamik dari reaksi elektrokimia lebih baik.

e) Reduksi Transformasi Energi

Ketika digunakan untuk menghasilkan energi listrik, *fuel cell* hanya membutuhkan sedikit transformasi energi, yaitu dari energi kimia menjadi energi listrik. Hal tersebut membedakan *fuel cell* dengan mesin kalor yang harus mengubah energi kimia menjadi energi panas, kemudian menjadi energi mekanik yang akan memutar generator untuk menghasilkan energi listrik. *Fuel cell* yang diaplikasikan untuk menggerakkan motor listrik memiliki jumlah transformasi energi yang sama dengan mesin kalor, tetapi transformasi energi pada *fuel cell* memiliki efisiensi yang lebih tinggi.

#### f) Waktu Pengisian Hidrogen Singkat

Sistem *fuel cell* tidak memerlukan penyetruman (*recharge*) layaknya baterai, namun sistem *fuel cell* harus diisi ulang dengan hidrogen. Proses pengisian tersebut dapat dilakukan dalam waktu yang lebih singkat jika dibandingkan dengan penyetruman baterai. Selain itu, baterai tidak dapat dipasang dalam jumlah besar pada mesin otomotif untuk meningkatkan performa karena akan semakin menambah beban pada kendaraan tersebut.

### 2.1.1.2. Kekurangan

#### a) Produksi dan Penyimpanan Hidrogen yang Sulit Dilakukan

Hidrogen sulit untuk diproduksi dan disimpan. Saat ini, proses produksi hidrogen masih sangat mahal dan membutuhkan input energi yang besar sehingga efisiensi produksi hidrogen masih rendah. Untuk mengatasi kesulitan ini, banyak negara menggunakan teknologi *reforming* hidrokarbon/fosil untuk memperoleh hidrogen. Namun, cara ini hanya digunakan dalam masa transisi untuk menuju produksi hidrogen dari air yang efisien.

#### b) Sensitif pada Kontaminasi Zat Asing

*Fuel cell* membutuhkan hidrogen murni yang bebas dari kontaminasi zat asing untuk dapat beroperasi dengan baik. Zat asing yang meliputi sulfur, campuran senyawa karbon, dan lain-lain dapat menonaktifkan katalisator dalam *fuel cell* dan secara efektif akan menghancurkannya. Pada mesin pembakaran

dalam (*internal combustion engine*), masuknya zat asing tersebut tidak menghalangi konversi energi melalui proses pembakaran.

c) Harga Katalis Platina yang Mahal

*Fuel cell* yang diaplikasikan pada industri otomotif memerlukan katalisator yang berupa platina untuk membantu reaksi pembangkitan listrik. Platina adalah logam yang jarang ditemui dan sangat mahal. Berdasarkan survei ahli geologi USA, total cadangan logam platina di dunia hanya sekitar 100 juta kg (Tonn et.al., 2001). Pada saat ini, diperkirakan teknologi *fuel cell* berkapasitas 50 kW memerlukan 100 gram platina sebagai katalisator. Jika penerapan teknologi *fuel cell* berjalan baik (pemakaian platina pada *fuel cell* dihemat, pertumbuhan pasar *fuel cell* rendah, dan permintaan platina rendah), maka diperkirakan logam platina akan habis sebelum tahun 2030 (Shipley, 2004). Oleh karena itu, penelitian untuk menemukan jenis katalis alternatif yang memiliki kemampuan mirip katalis platina sangat diperlukan.

d) Pembekuan

Selama beroperasi, sistem *fuel cell* menghasilkan panas yang dapat berguna untuk mencegah pembekuan pada temperatur lingkungan normal. Tetapi, jika temperatur lingkungan terlampaui sangat dingin ( $-10^{\circ}\text{C}$  hingga  $-20^{\circ}\text{C}$ ), maka air murni yang dihasilkan akan membeku di dalam *fuel cell* dan merusak membran *fuel cell* (Keenan, 2004).

e) Ketiadaan Infrastruktur

Pada saat ini, infrastruktur produksi hidrogen yang efektif belum tersedia. Tersedianya teknologi manufaktur dan produksi massal yang handal merupakan kunci penting usaha komersialisasi sistem *fuel cell*.

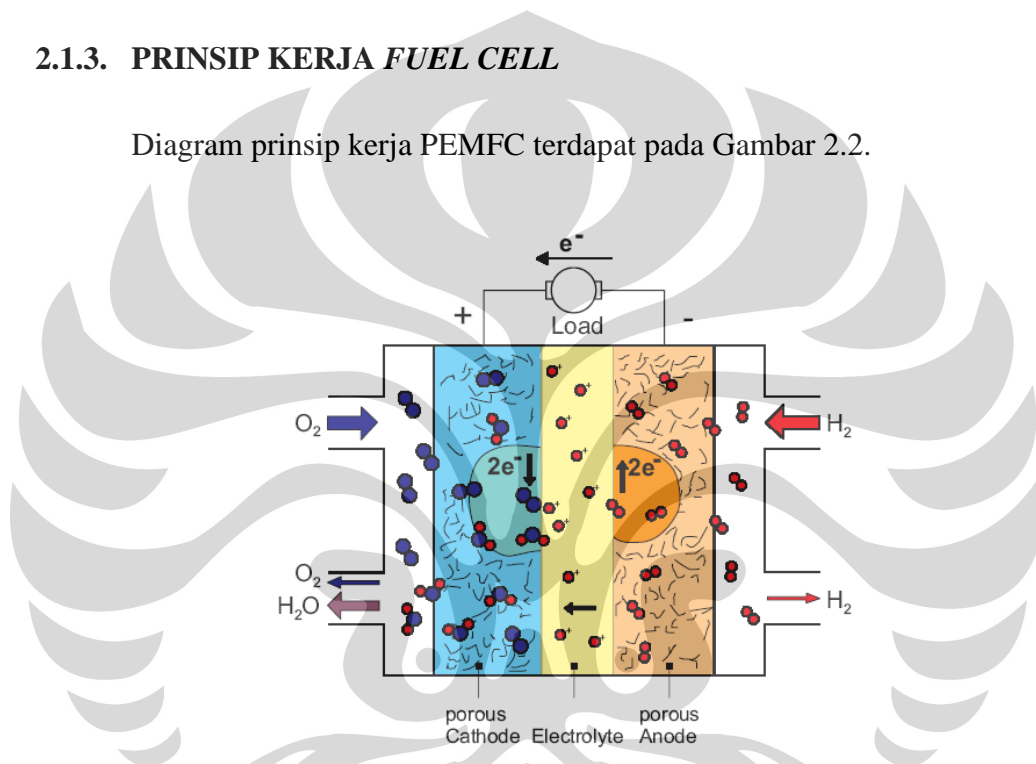
### 2.1.2. JENIS-JENIS FUEL CELL

Berdasarkan temperatur operasinya, *fuel cell* dapat dibedakan menjadi 2 jenis, yaitu *fuel cell* bersuhu rendah ( $< 600^{\circ}\text{C}$ ) dan *fuel cell* bersuhu tinggi ( $600-$

1000°C) (Carrette et al., 2001). *Fuel cell* bersuhu rendah terdiri dari *Alkaline Fuel Cell* (AFC), *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* (PEMFC), *Direct Methanol Fuel Cell* (DMFC), dan *Phosphoric Acid Fuel Cell* (PAFC). *Fuel cell* bersuhu tinggi terdiri dari *Molten Carbonate Fuel Cell* (MCFC) dan *Solid Oxide Fuel Cell* (SOFC). Seluruh tipe *fuel cell* tersebut, kecuali DMFC, dinamakan berdasarkan jenis elektrolit yang digunakan. Jenis *fuel cell* yang akan menjadi obyek dari penelitian ini adalah PEMFC.

### 2.1.3. PRINSIP KERJA FUEL CELL

Diagram prinsip kerja PEMFC terdapat pada Gambar 2.2.



**Gambar 2.2.** Diagram skematik *single cell* PEMFC berbahan bakar H<sub>2</sub> beserta reaksinya (Carrette et al., 2001)

Pada Gambar 2.2., hidrogen mengalir ke dalam katoda dan oksigen mengalir ke dalam anoda. Pada katoda, hidrogen mengalami reaksi membentuk ion H<sup>+</sup> dan elektron.



Selanjutnya, hidrogen akan mengalir menuju anoda melalui membran MEA yang bersifat selektif. Sementara itu, oksigen pada anoda mengalami reaksi menurut persamaan:



Saat ion hidrogen mencapai anoda, ion tersebut akan bereaksi dengan ion oksigen membentuk air menurut persamaan:



Sementara itu, elektron dari reaksi oksidasi hidrogen yang tidak dapat mengalir ke anoda melalui membran akan mengalir melalui sirkuit eksternal sebagai energi listrik yang dapat digunakan untuk berbagai pemanfaatan.

#### 2.1.4. EFISIENSI *FUEL CELL*

Pembangkit listrik yang menggunakan *fuel cell* dapat bekerja dengan efisiensi hingga dua kali lipat jika dibandingkan dengan pembangkit listrik termal. Hal tersebut disebabkan oleh efisiensi *fuel cell* yang tidak dibatasi oleh siklus Carnot. Reaksi yang paling dominan pada PEMFC adalah pembentukan air yang dapat direpresentasikan dengan dua reaksi setengah sel berikut.



Efisiensi operasi *fuel cell* bernilai lebih rendah dari nilai teoritis karena adanya overpotensial aktivasi, ohmik, dan transport massa. Seluruh energi yang diperoleh dari kedua reaksi pada katoda dan anoda dapat diubah menjadi energi listrik pada proses ideal. Jika  $\Delta H$  melambangkan total energi yang terdapat pada proses dan  $\Delta G$  melambangkan energi teoritis yang dapat dikonversi menjadi energi listrik, maka efisiensi teoritis dari reaksi pada *fuel cell* dapat diekspresikan dengan persamaan:

$$\varepsilon_r = \frac{\Delta G}{\Delta H} \quad (6)$$

Pada persamaan tersebut,  $\Delta G$  bernilai lebih kecil dari perubahan entalpi karena adanya entropi reaksi yang tidak menghasilkan listrik, tetapi menghasilkan panas. Efisiensi reaksi pada *fuel cell* adalah 94% berdasarkan *lower heating value* (LHV) dan 83% berdasarkan *higher heating value* (HHV).

Efisiensi voltase pada *fuel cell* dapat diekspresikan dengan persamaan:

$$\varepsilon_v = \frac{E(i)}{E_r} \quad (7)$$

Di mana  $E(i)$  merupakan potensial sel pada densitas arus ( $i$ ) dan  $E_r$  merupakan potensial reversibel.

Tipe efisiensi lain yang dapat ditemui pada *fuel cell* adalah efisiensi arus ( $\varepsilon_f$ ) yang dapat didefinisikan sebagai:

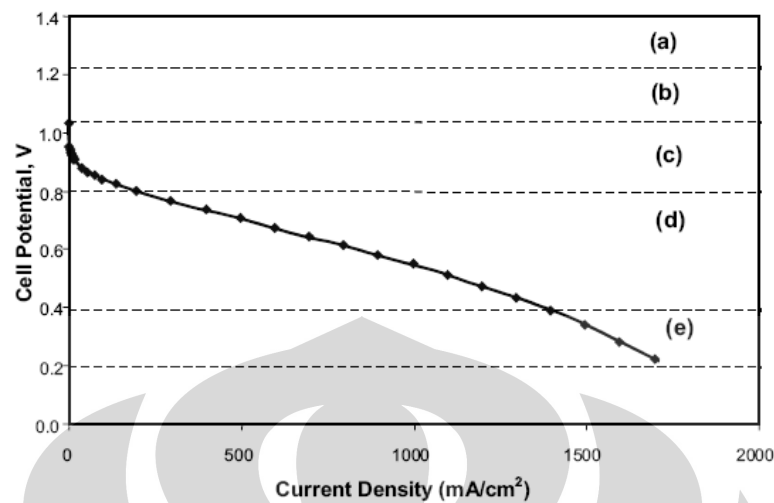
$$\varepsilon_f = \frac{i_f}{i_t} \quad (8)$$

Efisiensi arus dapat bernilai kurang dari 100% karena adanya bahan bakar yang tidak teroksidasi sempurna dan adanya crossover (aliran bahan bakar langsung dari anoda ke katoda) yang mengakibatkan terjadinya oksidasi pada katoda. Oksidasi pada katoda terjadi secara spontan dan tidak menghasilkan arus listrik. Pada persamaan efisiensi arus,  $i_f$  melambangkan arus yang terukur pada *fuel cell*, sementara  $i_t$  melambangkan arus teoritis yang dapat dicapai bila seluruh bahan bakar teroksidasi pada anoda. Efisiensi total *fuel cell* ( $\varepsilon$ ) dapat diekspresikan sebagai hasil perkalian dari seluruh efisiensi yang telah dibahas sehingga dapat dirumuskan sebagai:

$$\varepsilon = \varepsilon_r \varepsilon_v \varepsilon_f \quad (9)$$

### 2.1.5. KURVA POTENSIAL – DENSITAS ARUS SEBAGAI PARAMETER KINERJA PEMFC

Kinerja PEMFC biasa digambarkan dalam bentuk kurva potensial sebagai fungsi dari densitas arus. PEMFC yang memiliki kinerja yang baik akan memiliki kurva potensial – densitas arus yang landai karena densitas arus yang tinggi dapat dicapai pada potensial yang rendah. Efisiensi yang diperoleh pada *fuel cell* selalu bernilai 30-40% lebih rendah dari efisiensi teoritis karena adanya *overpotential loss*. Contoh kurva potensial vs densitas arus yang umum dijumpai pada *fuel cell* terdapat pada Gambar 2.3. (Srinivasan et. al., 1995).



**Gambar 2.3.** Kurva Potensial – Densitas Arus pada Fuel Cell  $H_2/O_2$  yang beroperasi pada  $T = 80^\circ C$  dan 3 atm

Secara teoritis, berdasarkan perhitungan dengan  $\Delta G$ , potensial rangkaian terbuka dari *fuel cell* adalah 1,23 V (Carrette et al., 2001). Namun, potensial yang ditemukan pada kondisi nyata selalu lebih rendah dari nilai tersebut. hal ini disebabkan beberapa faktor, antara lain:

- a) potensial yang bercampur pada katoda akibat adanya oksidasi platina,
- b) *fuel crossover*, dan
- c) kinetika reaksi ORR pada katoda yang sangat lambat dan mengakibatkan kehilangan hingga sebesar 200 mV pada *fuel cell* bertemperatur rendah dan medium.

Ada tiga jenis *overpotential loss* yang terjadi pada *fuel cell* (wilayah c, d, dan e pada kurva Potensial – Densitas Arus), yaitu:

- i. *activation overpotential* yang terjadi karena kinetika reaksi ORR yang lambat dan adanya kompetisi antar reaksi elektrokimia
- ii. *ohmic overpotential* karena adanya resistansi terhadap transfer proton pada elektrolit
- iii. kehilangan transfer massa pada kepadatan arus yang tinggi karena rendahnya konsentrasi gas reaktan pada interfasa elektrode – elektrolit.

Pada area (c), hanya terjadi *activation overpotential* yang terjadi pada elektrode oksigen. Pada area (d), terjadi *ohmic overpotential* yang dominan dengan sedikit kontribusi dari *activation overpotential* pada elektrode hidrogen dan oksigen.

Pada area (e), terjadi *mass transport overpotential* yang dominan, dengan kontribusi dari *activation overpotential* dan *ohmic overpotential* (Srinivasan et al., 1995). *Overpotential loss* pada masing-masing area terangkum dalam Tabel 2.1.

**Tabel 2.1.** *Overpotential loss* yang terjadi pada *fuel cell*, sebagaimana yang ditunjukkan pada Gambar 2.3.

Area	Kehilangan yang terjadi pada potensial sel
(a)	Perubahan entropi reaksi
(b)	Potensial elektrode oksigen yang bercampur dan laju <i>crossover</i> H <sub>2</sub> ke katoda yang rendah
(c)	<i>Activation overpotential</i> , sebagian besar terjadi pada elektrode oksigen
(d)	<i>Ohmic overpotential</i> , sebagian besar terjadi pada electrode
(e)	<i>Mass transport overpotential</i>

## 2.2. POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELL (PEMFC)

*Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell* (PEMFC) merupakan jenis *fuel cell* yang paling potensial untuk dikembangkan dan diproduksi secara massal. Hal ini disebabkan beberapa sifat-sifatnya yang menguntungkan, antara lain temperatur kerja yang relatif rendah jika dibandingkan dengan *fuel cell* jenis lain ( $\pm 90^\circ\text{C}$ ), densitas daya (*power density*) yang tinggi, sistemnya yang kompak, dan efisiensinya yang tinggi. Sifat-sifat tersebut memungkinkan PEMFC diaplikasikan secara massal pada bidang transportasi, pembangkit listrik skala rumah tangga, dan aplikasi portabel.

### 2.2.1. STRUKTUR PEMFC

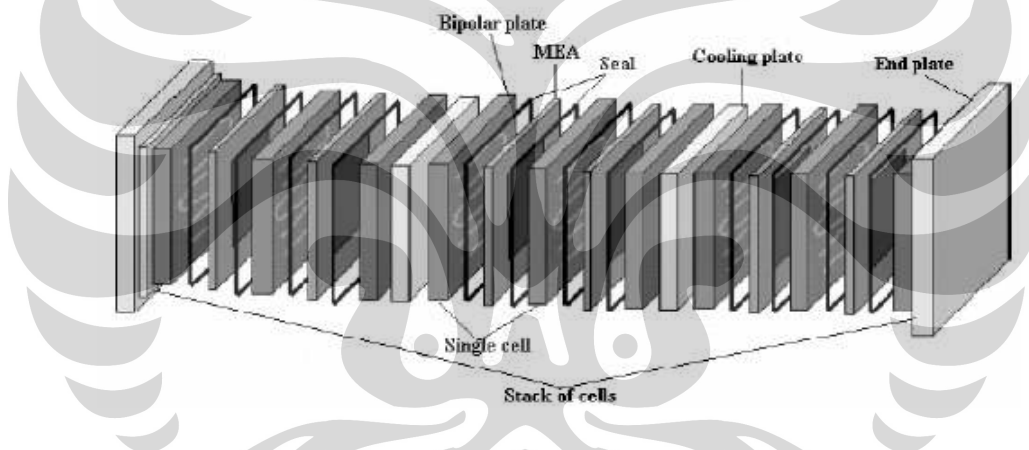
Konversi energi kimia menjadi energi listrik pada PEMFC terjadi melalui reaksi elektrokimia secara langsung dan tanpa pembakaran. Bagian terpenting dari PEMFC adalah *Membrane Electrode Assembly* (MEA) yang terdiri dari elektrolit polimer yang dikontakkan dengan anoda dan katoda pada kedua sisinya. Agar dapat berfungsi dengan baik, membran tersebut harus dapat mengkonduksikan



proton berupa ion hidrogen serta memisahkan gas  $H_2$  dan  $O_2$  agar tidak dapat bercampur dan bereaksi secara langsung di dalam PEMFC.

MEA sendiri terdiri dari dua komponen utama, yaitu membran dan elektroda. Elektroda terdiri dari dua bagian, yaitu anoda dan katoda. Di elektroda terdapat lapisan katalis serta lapisan difusi gas atau *Gas Diffusion Layer (GDL)*. MEA umumnya disusun diantara dua buah pelat *flowfield* yang identik sehingga membentuk pelat bipolar.

*Single cell* hanya dapat memproduksi listrik hingga 1 V. untuk dapat menghasilkan listrik dalam jumlah yang signifikan, beberapa *single cell* harus dirangkai membentuk *fuel cell stack* (Yuan et.al., 2005). Bentuk umum *fuel cell stack* ditunjukkan pada Gambar 2.4. Pada gambar tersebut, masing-masing *single cell* dihubungkan secara elektrik satu sama lain menggunakan *bipolar plate*.



Gambar 2.4. *Fuel cell stack* (Yuan et.al., 2005)

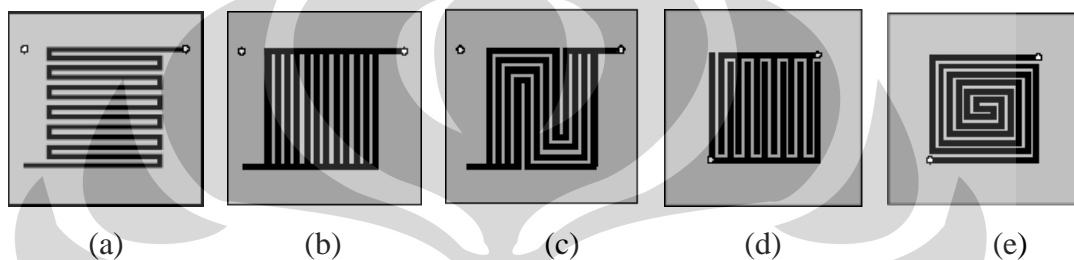
### 2.2.1.1. *Bipolar Plate*

Di antara semua komponen *fuel cell stack*, *bipolar plate* adalah salah satu komponen dengan harga yang paling mahal. *Bipolar plate* yang ideal harus memiliki beberapa sifat yang penting, antara lain: (Yuan et.al., 2005)

1. Harga rendah ( $< 2\$ / plate$ )
2. Mudah dilewati oleh aliran gas
3. Konduktivitas elektrik tinggi ( $> 100 S/cm$ )
4. Impermeabel terhadap gas
5. Mudah dibuat dan kuat
6. Memiliki berat dan volume yang rendah

7. Memiliki stabilitas kimia dan tahan terhadap korosi ( $< 16 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ )
8. Memiliki resistansi termal yang rendah

*Bipolar plate* merupakan komponen multifungsi dalam *fuel cell stack*. Fungsi utama *bipolar plate* adalah untuk menyuplai gas-gas reaktan ke *gas diffusion electrode* (GDE). Sebagian besar efektivitas dari transport reaktan bergantung pada desain *flow-field*, sehingga *bipolar plate* sering disebut sebagai *flow-field plate* (Yuan et.al., 2005). Beberapa contoh desain *flow-field* pada *bipolar plate* terdapat pada Gambar 2.5.



**Gambar 2.5.** Jenis-jenis lajur aliran: (a) serpentine channel, (b) parallel channel, (c) parallel serpentine channel, (d) discontinuous channels, (e) spiral channel geometry

Karakteristik *bipolar plate* yang ideal ditentukan oleh fungsi-fungsi utama *bipolar plate* dalam *fuel cell stack*, antara lain: (Barbir, 2005)

1. *Bipolar plate* menghubungkan setiap sel dalam *fuel cell stack* secara elektrik dalam rangkaian seri, maka harus memiliki konduktivitas elektrik yang tinggi
2. *Bipolar plate* memisahkan gas-gas reaktan yang berbeda di antara sel-sel yang berdekatan, maka harus bersifat impermeabel terhadap gas
3. *Bipolar plate* berfungsi sebagai penyangga struktural bagi *fuel cell stack*, maka harus memiliki kekuatan yang baik, namun tidak terlalu berat
4. *Bipolar plate* mengkonduksikan panas dari sel-sel aktif ke sel-sel pendingin sehingga harus memiliki konduktivitas termal yang tinggi
5. *Bipolar plate* memiliki *flow-field* channel sehingga harus bersifat conformable
6. *Bipolar plate* harus tahan terhadap korosi karena lingkungan kerja PEMFC yang sangat korosif (pH 2-3 dan suhu  $60^\circ\text{C} - 80^\circ\text{C}$ ). Oksida yang terbentuk akibat korosi dapat bermigrasi dan meracuni lapisan katalis serta meningkatkan resistivitas elektrik *bipolar plate*.
7. *Bipolar plate* harus terbuat dari bahan yang murah dan mudah didapat agar dapat diproduksi secara massal

Secara umum, ada dua jenis material yang banyak digunakan sebagai bahan *bipolar plate*, yaitu grafit komposit dan logam (Barbir, 2005). Karena lingkungan kerja *bipolar plate* sangat korosif, maka *bipolar plate* yang terbuat dari logam harus dilapisi dengan material yang tidak korosif dan memiliki konduktivitas elektrik yang baik, contohnya grafit, polimer konduktif, logam mulia, dan lain-lain. *Bipolar plate* dari karbon komposit dibuat dengan menggunakan resin termoplastik atau termoset dengan filler (berupa bubuk karbon/grafit, *carbon black*, atau *coke-graphite*) dan dapat diperkuat dengan fiber. Material-material tersebut pada umumnya bersifat stabil secara kimia pada lingkungan kerja *fuel cell*, walaupun beberapa jenis termoset dapat mengalami *leaching*.

#### 2.2.1.2. Membrane Electrode Assemblies (MEA)

*Membrane electrode assemblies* (MEA) merupakan jantung PEMFC, tempat terjadinya reaksi elektrokimia yang menghasilkan arus listrik. Komponen-komponen utama MEA antara lain elektrolit konduktor ion berupa membran, lapisan katalis pada katoda dan anoda, serta *gas diffusion layer* (GDL) yang menempel pada masing-masing lapisan katalis. Skema MEA ditunjukkan pada gambar 2.6. (Shen, 2008).



**Gambar 2.6.** Diagram skematik struktur MEA. BP – *bipolar plate*; GDL – *gas diffusion layer*; ACL – lapisan katalis anoda; CCL – lapisan katalis katoda; PEM – membran penukar proton (Shen, 2008)

## 1) *Gas Diffusion Layer (GDL)*

Komponen-komponen utama PEMFC adalah *gas diffusion layer (GDL)*, membran, dan katalis. Pada PEMFC, GDL memiliki beberapa fungsi, antara lain:

- melewati gas-gas reaktan dan produk untuk mengalir di antara anoda dan katoda
- penyangga struktural bagi lapisan katalis
- konduktor listrik antara katalis dan *current collector plate*
- terkadang, GDL juga digunakan sebagai substrat untuk deposisi katalis.

Untuk menjalankan fungsinya dengan baik, GDL harus memiliki ketebalan serendah mungkin dengan hambatan listrik yang rendah. Dengan ketebalan yang rendah, gas-gas reaktan dan produk akan dapat berdifusi dengan lebih mudah (permeabilitas gas tinggi). Untuk menghasilkan transport massa yang optimum, GDL dibuat bersifat porous tanpa terlalu menurunkan konduktivitas listriknya. Berdasarkan praktek, GDL yang terlalu tipis tidak dapat memberikan kontak elektrik yang baik antara *current collector plate* dengan lapisan katalis, sementara GDL yang terlalu tebal menghasilkan hambatan listrik yang terlalu besar. Oleh karena itu, setiap jenis material yang digunakan sebagai GDL memiliki ketebalan optimum tertentu yang berbeda-beda (Mathur, 2005).

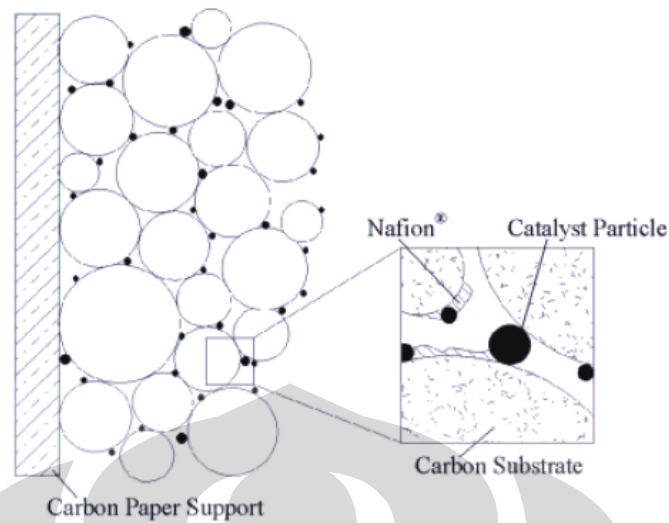
GDL terdapat secara komersial dalam bentuk kertas karbon dan kain karbon. Membrane electrode assemblies (MEA) yang dibuat dengan GDL dari kertas karbon menghasilkan performa yang lebih baik pada densitas arus yang rendah, sementara MEA dengan GDL dari kain karbon menghasilkan performa yang lebih baik pada densitas arus yang tinggi (Moreira et.al., 2002).

Air yang terbentuk pada PEMFC tidak boleh menyumbat pori-pori kertas/kain yang digunakan pada GDL. Oleh karena itu, pada umumnya kertas/kain pada GDL mengandung material hidrofobik seperti *polytetrafluoroethylene (PTFE)* atau material khusus lainnya untuk mencegah terjadinya kebasahan. Material hidrofobik tersebut mencegah terjadinya kadar air yang berlebih sehingga lapisan katalis tidak dibanjiri oleh air dan dapat bekerja secara maksimal. Material tersebut juga membantu mempertahankan

keseimbangan air pada membran dengan melewati air dalam jumlah yang sesuai dan mencegah air yang berlebih mengalir menuju membran.

Pembuatan GDL dengan material hidrofobik seperti PTFE sangat penting untuk pengaturan kadar air yang baik, namun PTFE bukan merupakan material konduktor listrik sehingga kadarnya harus diperhatikan secara serius. Kadar PTFE yang umum digunakan pada PEMFC adalah 33% massa. Pada saat ini, GDL yang umum digunakan memiliki lapisan hidrofobik mikroporous pada sisi GDL yang menghadap ke lapisan katalis. Lapisan hidrofobik mikroporous yang paling banyak digunakan terdiri dari PTFE dan *carbon black*. *Carbon black* digunakan sebagai campuran karena memiliki sifat kelistrikan yang baik dan dapat memperbaiki transport massa yang melalui lapisan katalis. Tipe karbon yang digunakan juga berdampak pada performa PEMFC. Karbon merupakan material yang sangat penting pada PEMFC karena memiliki sifat konduktansi elektrik, ketahanan korosi, dan rendahnya harga (Mathur, 2005).

Bagian terpenting dari suatu elektrode pada PEMFC terletak pada *boundary layer* antara tiga fasa konduktor ionik, partikel katalis, dan suplai gas. Contoh skema *boundary layer* tersebut terdapat pada Gambar 2.7. Konduktor ionik yang digunakan pada PEMFC adalah suatu *gas diffusion layer* (GDL) yang dapat terbuat dari kertas karbon (*carbon paper*) atau kain karbon (*carbon cloth*) dengan ketebalan 100-400  $\mu\text{m}$ . Selain berfungsi sebagai konduktor yang mengumpulkan elektron dan mengalirkannya ke *current collector*, GDL juga berfungsi menyalurkan gas dari anoda ke katoda dan menjaga kelembaban membran. Karena sifatnya yang hidrofilik, GDL biasa dilapisi dengan politetrafluoroetena (PTFE) yang bersifat hidrofobik agar pori-pori pada GDL tidak tertutup air (*flooding*) dan tetap dapat dilalui oleh partikel gas (Carrette et al., 2001).



**Gambar 2.7.** Boundary layer yang terbentuk antara partikel katalis, ionomer, dan fasa gas (Carrette et al., 2001)

## 2) Lapisan Katalis

Lapisan katalis pada PEMFC berada dalam kontak langsung dengan membran dan GDL. Lapisan katalis merupakan lokasi terjadinya reaksi setengah sel, baik pada katoda maupun anoda. Lapisan katalis tersebut dapat dilapiskan pada GDL ataupun pada membran, selama partikel-partikel katalis berada sedekat mungkin dengan membran. Hingga saat ini, platina masih merupakan katalis terbaik yang dapat digunakan pada PEMFC. Sifat-sifat lapisan katalis yang penting untuk dipertimbangkan dalam desain *fuel cell* antara lain *loading* katalis, difusivitas reaktan, konduktivitas ionik dan elektrik, serta keuletan katalis. (Litster et.al., 2004)

## 3) Membran

PEMFC membutuhkan polimer penukar ion yang berbentuk lembaran kontinu tanpa pori. Sifat-sifat membran elektrolit penukar ion yang baik antara lain konduktivitas ionik yang tinggi, konduktivitas elektrik yang rendah, permeabilitas gas yang rendah, memiliki stabilitas dimensional dan kekuatan mekanis yang tinggi, ketahanan yang tinggi terhadap degradasi, dan memiliki stabilitas kimia terhadap oksidasi dan hidrolisis. (Dhathathreyan, et.al., 2009).

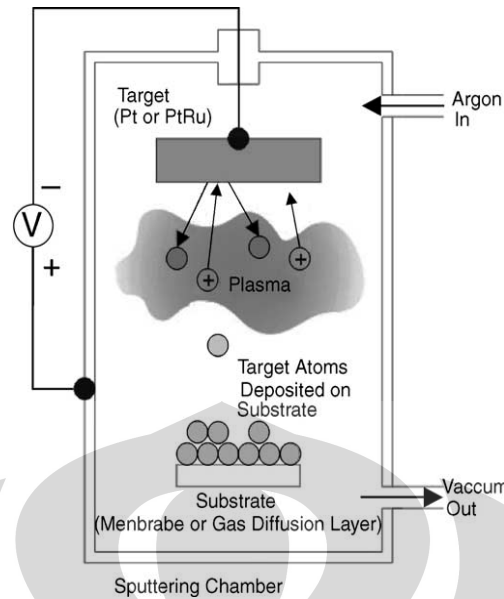
Material yang paling banyak digunakan sebagai membran PEMFC pada saat ini adalah *perfluorosulfonic acid* (PFSA). Membran PSFA bersifat stabil baik pada keadaan basa maupun asam karena sebagian besar strukturnya terdiri dari PTFE *backbone* (Shen, 2008). Konduktivitas dari membran PFSA berkelembaban sesuai dapat bernilai hingga  $0,2 \text{ S/cm}^2$ . Operasi *fuel cell* dapat berlangsung dengan lebih baik pada suhu tinggi karena meningkatnya laju reaksi dan menurunnya peracunan katalis. Sayangnya, membran PFSA harus tetap berada dalam kondisi terhidrasi agar memiliki konduktivitas proton yang tinggi. Oleh karena itu, suhu operasi PEMFC yang menggunakan membran PFSA tidak dapat terlalu tinggi.

### 2.2.1.3. *End Plate*

*End plate* merupakan pelat penutup yang berfungsi sebagai penjepit kedua elektroda dan mengencangkan sel PEMFC. Pelat penutup pada *fuel cell stack* PEMFC berjumlah dua buah yang terdapat pada sisi anoda dan sisi katoda.

## 2.3. TEKNIK DEPOSISI *SPUTTERING*

Metode-metode pembuatan MEA yang paling umum digunakan pada saat ini antara lain metode *brush coating*, *spray coating*, dan *print coating* tinta katalis ke kertas/kain karbon. Tinta katalis yang digunakan berupa campuran tiga fasa katalis, karbon, dan elektrolit (yang biasanya berupa larutan Nafion). Namun, metode-metode tersebut menghasilkan lapisan katalis dengan ketebalan yang cukup tinggi. Hal tersebut memperburuk kinerja PEMFC karena menambah resistansi ohmik dan mengakibatkan adanya gradien konsentrasi reaktan pada lapisan katalis. Salah satu metode alternatif yang dapat digunakan untuk mengatasi masalah tersebut adalah metode *sputter deposition* (Bhushan et. al., 1997).



**Gambar 2.8.** Skema proses *sputter deposition* (Litster et.al., 2004)

Skema proses *sputter deposition* terdapat pada Gambar 2.8. Berdasarkan gambar tersebut, pada proses *sputter deposition*, material *coating* (target) berbentuk padat dibombardir oleh partikel berenergi tinggi hingga atom-atom target terlepas dari padatan secara individual. Partikel berenergi tinggi yang digunakan berupa plasma dari gas berat yang bersifat inert terhadap material *coating*. Gas berat yang biasa digunakan pada proses *sputter deposition* adalah argon. Sementara itu, material yang akan di-*coating* (substrat) diletakkan di depan target sehingga memotong fluks atom-atom yang lepas dari target.

Sebelum proses *sputter deposition* dimulai, target berupa platina dihubungkan dengan voltase negatif dari sumber energi (katoda) dan substrat diletakkan di depan target (anoda). Setelah itu, ruangan tempat terjadinya proses *sputtering* divakumkan, dan gas berat berupa argon dimasukkan ke dalam ruang tersebut. Saat proses dimulai, medan magnet dalam ruang tempat *sputtering* akan mengakibatkan elektron terlepas dari atom-atom argon sehingga atom-atom tersebut membentuk plasma yang bermuatan positif. Selanjutnya, plasma tersebut akan menyerang atom-atom di permukaan target sehingga terjadi transfer momentum dan atom-atom target terlepas. Karena substrat berada pada fluks atom-atom target yang terlepas, atom-atom tersebut mengalami kondensasi di permukaan substrat dan melapisi substrat (Bhushan et. al., 1997).



*Sputter deposition* telah diteliti selama lebih dari satu dekade untuk pelapisan elektroda pada sel bahan bakar agar lebih efektif. Witham *et.al.* mendapatkan kinerja katalis pada DMFC sampai dua kali lipat lebih tinggi dari penggunaan metode konvensional katalis berbasis tinta katalis (Witham et al., 2000). Selain meningkatkan kinerja, *sputter deposition* juga digunakan untuk mengurangi jumlah katalis anoda yang diperlukan untuk *fuel cell*. Hirano et al. melapiskan suatu film tipis Pt 50 nm ke permukaan GDL untuk mengurangi *loading* sampai sepersepuluhnya tanpa pengurangan kinerja *fuel cell* (Hirano et al., 1997).

## **2.4. CARBON NANO TUBE (CNT)**

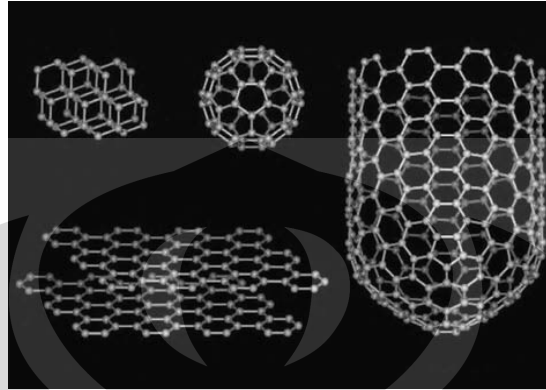
### **2.4.1. DESKRIPSI CARBON NANO TUBE**

*Carbon nanotube* (CNT) adalah suatu rangkaian karbon berukuran nano yang mempunyai rasio antara panjang dan diameter hingga 28.000.000 : 1. Rasio ini jauh lebih besar dibanding material lain. CNT memiliki sifat-sifat yang baik sehingga berpotensi untuk digunakan pada berbagai aplikasi dalam nanoteknologi, elektronik, optik, dan lainnya. CNT memiliki kekuatan yang luar biasa dan sifat elektrik yang unik serta merupakan konduktor panas yang efisien. Namun, penggunaan CNT cukup terbatas karena berpotensi menimbulkan keracunan.

Carbon nanotube adalah ikatan antar atom karbon, dimana 1 atom karbon berikatan dengan 3 atom karbon yang lain. Bentuk ikatannya berupa silinder yang jari-jarinya berada dalam orde nanometer. Unsur karbon dapat memiliki berbagai macam bentuk geometri, yang disebut dengan alotrop, yang memiliki sifat berbeda. Hal tersebut disebabkan karbon memiliki tiga kemungkinan untuk berhibridisasi, yaitu  $sp$ ,  $sp^2$  dan  $sp^3$ , sebagai konsekuensi sifatnya sebagai unsur golongan IV (O'Connell, 2006).

Karbon yang berada dalam fasa padat memiliki tiga jenis alotrop, yaitu grafit, intan, dan buckminsterfullerene. Bentuk ikatan antaratom ketiga alotrop tersebut beserta CNT terdapat pada Gambar 2.9. Intan merupakan karbon padat dengan struktur kristalin di mana setiap atom karbon memiliki hibridisasi  $sp^3$  dan

terikat dalam susunan tetrahedral ke 4 atom karbon lain yang serupa. Struktur kristalin tersebut mengakibatkan intan menjadi material paling keras dan memiliki konduktivitas panas yang sangat baik. Selain itu, ikatan hibridisasi  $sp^3$  pada intan juga mengakibatkan sifat transparansi optikal dan insulasi elektrik.



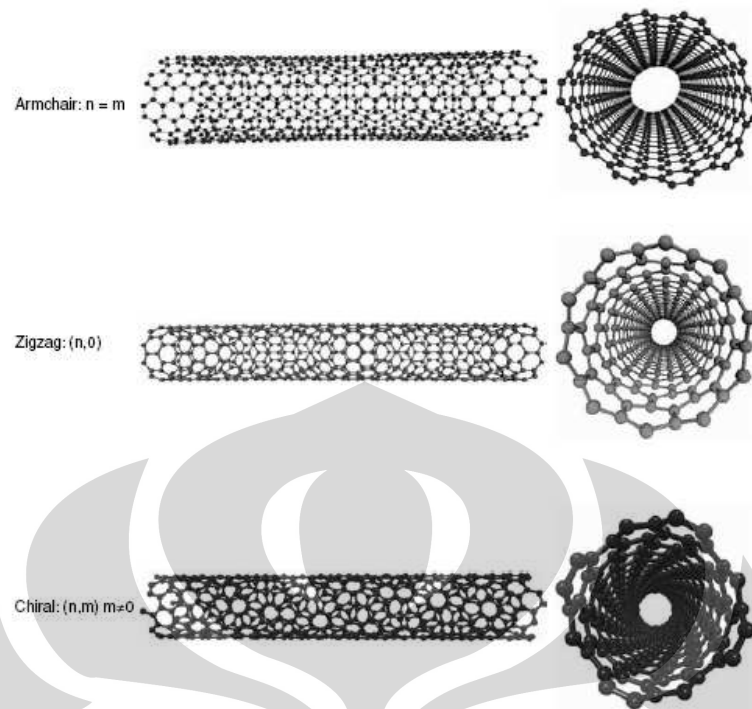
**Gambar 2.9.** Bentuk-bentuk alotrop karbon (intan, grafit, fullerene) dan CNT. (O'Connell, 2006)

Sementara itu, grafit tersusun dari atom-atom karbon berhibridisasi  $sp^2$  yang berikatan dalam bentuk heksagonal dan membentuk berlapis-lapis lembaran planar. Geometri ikatan pada grafit mengakibatkan grafit bersifat lunak, tak tembus cahaya, dan memiliki konduktivitas elektrik yang baik. Sementara itu, buckminsterfullerene atau fullerene tersusun dari atom-atom karbon berhibridisasi  $sp^2$  yang membentuk struktur bola. *Carbon nano tube* (CNT) merupakan fullerene yang memiliki bentuk tabung (O'Connell, 2006).

Berdasarkan jumlah penyusun dindingnya, CNT dibagi menjadi dua jenis, yaitu *Single Walled Nanotube* (SWNT) dan *Multi Walled Nanotube* (MWNT).

a. *Single Walled Nanotube* (SWNT)

Sebagian besar SWNT memiliki diameter mendekati 1 nanometer dengan panjang yang dapat mencapai jutaan kali. Berdasarkan dari arah susunan karbon, SWNT dibagi menjadi tiga, yaitu *armchair*, *zig-zag* dan *chiral*. Bentuk ketiga jenis SWNT tersebut terdapat pada Gambar 2.10.



**Gambar 2.10.** Armchair, zig-zag, dan chiral SWNT (O'Connell, 2006)

SWNT adalah sebuah CNT yang sangat istimewa karena menunjukkan sifat-sifat elektrik yang tidak dimiliki oleh MWNT.

b. *Multi Walled Nanotube* (MWNT)

Berbeda dengan SWNT, MWNT terdiri dari beberapa lapis grafit. Pelapisan ini menyerupai model “boneka Rusia”. Salah satu anggota dari MWNT adalah double walled nanotube (DWNT). DWNT sangatlah menarik karena morfologi dan sifat-sifatnya mirip dengan SWNT, tetapi kekuatannya terhadap bahan kimia jauh meningkat.

CNT memiliki sifat-sifat sebagai berikut:

a. Kekuatan

CNT adalah material terkuat yang telah ditemukan dalam hal kekuatan tarik dan modulus elastisitas. Kekuatan ini disebabkan oleh ikatan  $sp^2$  yang terbentuk antara masing-masing atom karbon. Pada tahun 2000, pengujian dilakukan pada sebuah MWNT, memiliki kekuatan tarik sebesar 63 gigapascal (GPa). CNT memiliki densitas sebesar 1,3 hingga 1,4  $g.cm^{-3}$  dan memiliki kekuatan spesifik sebesar 48.000  $kN.m.kg^{-1}$ . Inilah yang membuat CNT merupakan material yang paling kuat karena *carbon steel* hanya memiliki

kekuatan spesifik sebesar  $154 \text{ kN.m.kg}^{-1}$ . Ketika ditarik, suatu saat tube ini akan memasuki fase deformasi plastis, yang akan menyebabkan CNT tersebut berdeformasi permanen.

b. Elektrik

CNT memiliki sifat-sifat elektrik yang baik karena bersimetri dan memiliki struktur elektronik yang unik. Secara teoritis, CNT dapat membawa arus listrik sebesar  $4 \times 10^9 \text{ A/cm}^2$ , sekitar 1000 kali lebih baik dibanding tembaga.

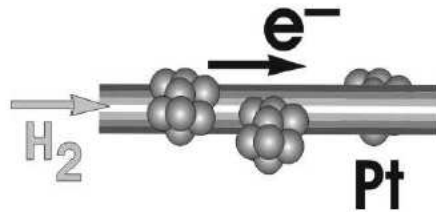
c. Termal

Seluruh CNT memiliki konduktansi termal yang sangat baik pada bagian tabungnya, karena menunjukkan sifat yang disebut sebagai “konduksi balistik”, tetapi merupakan insulator yang baik pada bagian axis tabung tersebut. Sebuah CNT diprediksi memiliki kemampuan untuk mengirimkan  $6000 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pada temperatur ruang. Hal ini secara signifikan melampaui tembaga yang dapat mengirimkan  $385 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

#### 2.4.2. PENGGUNAAN CNT SEBAGAI *CATALYST SUPPORT* PADA PEMFC

Hingga saat ini, material karbon berukuran sub mikro (terutama *carbon black*) telah digunakan sebagai material penyangga katalis. Namun, material-material baru seperti karbon berukuran nano, material tipe *bucky*, fullerene, dan *carbon nanotube* (CNT) juga mulai banyak digunakan. Sebagai katalis, material-material tersebut tidak hanya dapat menyediakan stabilitas kimia dan mekanis serta konduktivitas elektrik yang lebih tinggi, tetapi juga *interphase boundary* yang lebih baik.

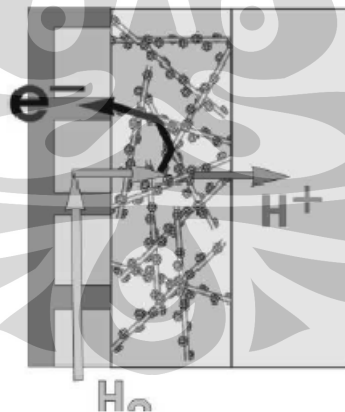
Sebagai penyangga katalis pada PEMFC, CNT yang berupa *tube* berukuran nanometer dapat menyediakan saluran transport gas. Ilustrasi fungsi CNT sebagai penyangga katalis terdapat pada Gambar 2.11. Volume *tube* yang kecil tidak memungkinkan mengalirnya material lain selain gas. CNT dapat diperoleh dengan panjang antara 100 hingga 1.000 nm. Dengan panjang tersebut, suatu *tube* CNT dapat menembus seluruh lapisan reaksi dan menyediakan ventilasi yang baik bagi seluruh lapisan reaksi (Budevski, 2003).



**Gambar 2.11.** CNT dengan dispersi katalis (Budevski, 2003)

Kelompok partikel-partikel katalis terdeposisi pada permukaan luar tube dan CNT – katalis melekat pada *proton conductive polymer matrix* (campuran tersebut berupa *nafion – carbon ink* yang melapisi GDL pada PEMFC) yang dapat membentuk lapisan tipis. Selanjutnya, lapisan tipis tersebut dapat menempel pada *proton conductive membrane* dari material yang sama (membran nafion).

Skema *integrated breathing reaction layer (IBRL)* ditunjukkan pada gambar 2.12. Pada IBRL tersebut, penggunaan Pt dapat mencapai 100%. Ketebalan IBRL dapat disesuaikan berdasarkan kebutuhan *power density*. Pengelupasan IBRL dari substrat hamper tidak mungkin terjadi bila matriks IBRL dan membran terbuat dari *polymer conductive matrix* yang sama (Budevski, 2003).

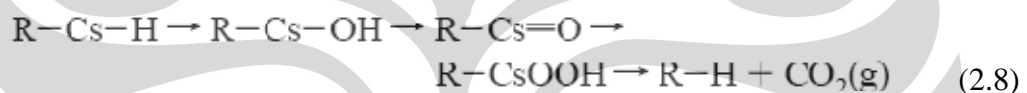


**Gambar 2.12.** IBRL pada elektroda

Ukuran nanometer pada penyangga katalis membawa efek menguntungkan lain. Jarak antara serat-serat berkatalis sangat kecil sehingga partikel katalis yang tidak memiliki kontak langsung dengan elektron dapat dapat diefektifkan melalui sistem

tunneling. Pada kasus tersebut, hidrogen disuplai ke katalis melalui tube CNT dan difusi.

Dalam beberapa tahun terakhir, ketahanan penggunaan PEMFC dalam waktu lama telah menjadi salah satu masalah terpenting yang harus diatasi sebelum PEMFC dapat digunakan secara komersial. Di antara semua aspek degradasi, degradasi dari katalis Pt berpenyangga karbon (Pt/C) karena korosi pada penyangga karbon adalah faktor utama penyebab rendahnya usia PEMFC. Korosi tersebut disebabkan oleh reaksi oksidasi elektrokimia yang dialami karbon pada kondisi operasi PEMFC sehingga karbon terdegradasi membentuk CO<sub>2</sub> dan oksida karbon lainnya. Salah satu mekanisme reaksi yang diusulkan untuk pembentukan oksida karbon dan evolusi CO<sub>2</sub> ditunjukkan pada persamaan reaksi berikut.



Jika penyangga karbon teroksidasi menjadi CO<sub>2</sub>, Pt akan hilang dari penyangga karbon. Dengan demikian, semakin banyak karbon yang teroksidasi, semakin banyak pula Pt yang hilang. Jika karbon teroksidasi secara parsial membentuk oksida permukaan, keberadaan gugus-gugus yang mengandung oksigen akan menurunkan konduktivitas katalis dan melemahkan interaksi antara karbon penyangga dan partikel logam katalis. Selain itu, oksida karbon pada permukaan juga menurunkan tingkat hidrofobisitas yang sangat penting dalam pengaturan kadar air. Karena kadar air merupakan faktor yang sangat kritis dalam aplikasi PEMFC, korosi karbon sangat mempengaruhi usia PEMFC.

Dalam beberapa saat terakhir, *carbon nano tube* (CNT) telah dikemukakan sebagai material penyangga katalis yang menjanjikan karena karakteristiknya yang unik. Karakteristik tersebut antara lain aspek rasio yang tinggi, konduktivitas elektron yang tinggi, dan kapabilitas transport massa yang baik. Selain itu, beberapa studi telah melaporkan bahwa CNT memiliki ketahanan yang lebih tinggi terhadap oksidasi elektrokimia dibandingkan dengan *carbon black* yang umum digunakan saat ini. CNT memiliki struktur yang lebih tertutup dari *carbon*

*black* sehingga lebih sulit untuk diserang oleh atom-atom oksidan. Sebagai akibatnya, CNT bersifat lebih stabil dalam kondisi oksidatif (Wang et.al, 2008).

Durabilitas *fuel cell* sangat dipengaruhi oleh korosi penyangga karbon pada kondisi operasi katoda, terutama karena adanya produksi hidrogen peroksida sebagai produk *intermediate*. Beberapa studi telah menunjukkan bahwa ukuran partikel Pt dapat membesar hingga dua kali setelah waktu operasi selama 200 jam (Wang et al, 2006). dengan demikian, penggunaan CNT, yang telah dikenal sebagai material inert dan memiliki kekuatan mekanis yang luar biasa, dapat meningkatkan ketahanan MEA pada *fuel cell*.

Pembuktian durabilitas CNT telah dilakukan dengan *potentiostatic treatment* yang dilakukan selama 168 jam pada Pt yang disangga oleh CNT maupun karbon Vulcan XC-72. Uji tersebut menunjukkan bahwa CNT memiliki oksida permukaan yang lebih sedikit dari Vulcan XC-72, sehingga secara bersamaan menurunkan laju korosi hingga 30%. Hal tersebut juga didukung oleh histogram distribusi ukuran partikel Pt yang mengkonfirmasi bahwa ukuran awal partikel Pt pada Vulcan XC-72 rata-rata sebesar 2,5 nm dan berubah menjadi 4,8 nm setelah 168 jam operasi. Sementara itu, partikel Pt pada CNT hanya menunjukkan sedikit kenaikan ukuran, dan sebagian besar partikel tetap berukuran 2,5 nm. Selain itu, setelah mengalami perlakuan oksidasi tersebut, Pt-CNT tetap menunjukkan aktivitas katalitik terhadap ORR, sementara sampel Pt-C menunjukkan penurunan drastis pada potensial onset ORR (~120 mV) (Wang et al., 2006).

Selain menurunkan tingkat degradasi, penggunaan CNT juga dapat menurunkan jumlah katalis Pt yang digunakan pada PEMFC. Hal ini telah dibuktikan oleh penelitian yang menunjukkan bahwa penggunaan CNT dapat menurunkan loading katalis Pt hingga 6  $\mu\text{g}$  tanpa menurunkan kinerja PEMFC (Tang et.al, 2007). Selain itu, penelitian lain juga membuktikan bahwa CNT dapat meningkatkan ketahanan PEMFC terhadap CO (Tanaka et.al, 2009). Hal tersebut sangat penting karena dapat mengatasi permasalahan degradasi katalis pada katoda akibat adanya CO pada gas  $\text{H}_2$  hasil *reforming*.

Beberapa kelebihan lain CNT jika dibandingkan dengan *carbon black* Vulcan XC-72 antara lain:

1. CNT memiliki kekuatan yang jauh lebih tinggi dari carbon black karena ikatan antar atom karbon pada CNT merupakan salah satu ikatan terkuat di alam. Ikatan tersebut menyebabkan CNT memiliki modulus Young dan yield strength yang tinggi.
2. CNT memiliki konduktivitas elektrik yang tinggi, mendekati  $10^6$  S/m
3. Konduktivitas termal yang tinggi, dapat mencapai 6600 W/mK pada suhu ruang
4. CNT memiliki luas area spesifik yang tinggi sehingga jumlah katalis yang dapat terdispersi pada permukaan CNT lebih tinggi dari jumlah katalis yang dapat terdispersi pada carbon black. (O'Connell, 2006)

#### **2.4.3. DEPOSISI PENYANGGA KATALIS CNT DENGAN METODE FILTRASI**

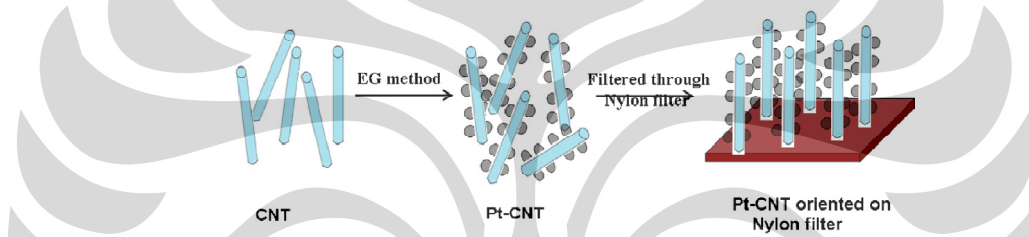
Kinetika reaksi reduksi oksigen (*oxygen reduction reaction*, ORR) yang lambat pada katoda MEA menyebabkan kebutuhan Pt pada bagian katoda lebih tinggi dari bagian anoda. Namun, pada banyak kasus, penggunaan CNT telah menunjukkan performa densitas arus yang lebih baik pada reaksi ORR tanpa menyebabkan sifat mekanis yang buruk bagi elektrokatalis. Yan, et al. telah mempelopori penggunaan CNT sebagai penyangga katalis pada katoda untuk memperbaiki utilisasi Pt (Li et al., 2005). Penelitian awal mereka yang mendeposisikan partikel Pt berukuran 4 nm pada CNT dapat menunjukkan densitas arus dan daya yang lebih baik pada semua area (area aktivasi, ohmik, dan transport massa), kemungkinan karena sifat intrinsik CNT yang dapat meningkatkan kinetika reaksi ORR.

Transport massa yang lebih baik diperkirakan dapat menjadi keuntungan penggunaan CNT pada elektroda, selain *ohmic loss* yang lebih rendah. Hal tersebut sesuai dengan hasil berbagai penelitian yang menunjukkan bahwa konduktivitas elektrik CNT lebih tinggi dari berbagai bentuk karbon lain. Hal tersebut meningkatkan utilisasi Pt hingga 58%, lebih tinggi dari utilisasi Pt



sebesar 34% pada elektroda berbasis karbon dalam bentuk lain (Wang et al., 2006).

CNT bersifat hidrofobik sehingga dapat membantu mengontrol kelebihan kadar air pada MEA. CNT yang terorientasi menunjukkan sifat hidrofobik yang lebih tinggi dari CNT dengan bentuk yang tidak tersusun. Selain itu, konduktivitas elektronik dan permeabilitas gas pada CNT lebih tinggi di sepanjang *tube* daripada melintang *tube*, sehingga menghasilkan transport massa yang lebih baik. Dengan mempertimbangkan semua kelebihan CNT yang terorientasi tersebut, Yan et al. telah mengembangkan metode yang sangat unik untuk memodifikasi susunan orientasi CNT dengan menggunakan metode filtrasi yang diikuti oleh transfer ke membran. Proses tersebut ditunjukkan pada Gambar 2.13.



**Gambar 2.13.** Metode modifikasi orientasi CNT dengan filtrasi (Kannan, 2009)

Pada metode tersebut, permukaan CNT dikontakkan dengan gugus fungsional seperti  $\text{-COOH}$  melalui proses reflux dengan campuran  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4$  yang diikuti dengan reduksi kimia larutan prekursor Pt pada CNT tersebut melalui metode etilen glikol. Proses tersebut menghasilkan Pt yang terikat kuat pada permukaan CNT. Setelah proses tersebut, CNT difiltrasi menggunakan membran hidrofilik dengan ukuran pori yang terkontrol sehingga CNT dapat berada pada posisi tegak lurus terhadap membran hidrofilik. Penggunaan CNT terorientasi hasil proses filtrasi dapat menghasilkan *fuel cell* dengan performa yang lebih baik dibandingkan dengan electrode yang menggunakan CNT berorientasi acak (Kannan, 2009).

## BAB 3 METODOLOGI PENELITIAN

### 3.1 RANCANGAN PENELITIAN

Diagram alir penelitian terdapat pada Gambar 3.1. Penelitian ini dapat dibagi menjadi tiga tahapan besar, yaitu:

1. Fabrikasi *Membrane Electrode Assembly* (MEA)

Tahap ini dibagi menjadi lima langkah, yaitu preparasi membran, fabrikasi lapisan katalis, pembuatan GDL, dan hot pressing.

2. *Set up* sistem PEMFC

Tahap ini terbagi menjadi dua langkah, yaitu *set up* seluruh peralatan utama dan pendukung menjadi suatu sistem terpadu serta uji kebocoran unit dan sistem PEMFC.

3. Uji kinerja PEMFC

Pada tahap ini dilakukan pengambilan data penelitian, pengolahan data serta analisis hasil untuk mengetahui kinerja dari sel tunggal PEMFC yang telah dibuat. Uji kinerja dilakukan dengan *DC electronic load*.

Variabel bebas dari kondisi operasi yang divariasikan adalah:

1. Jenis karbon

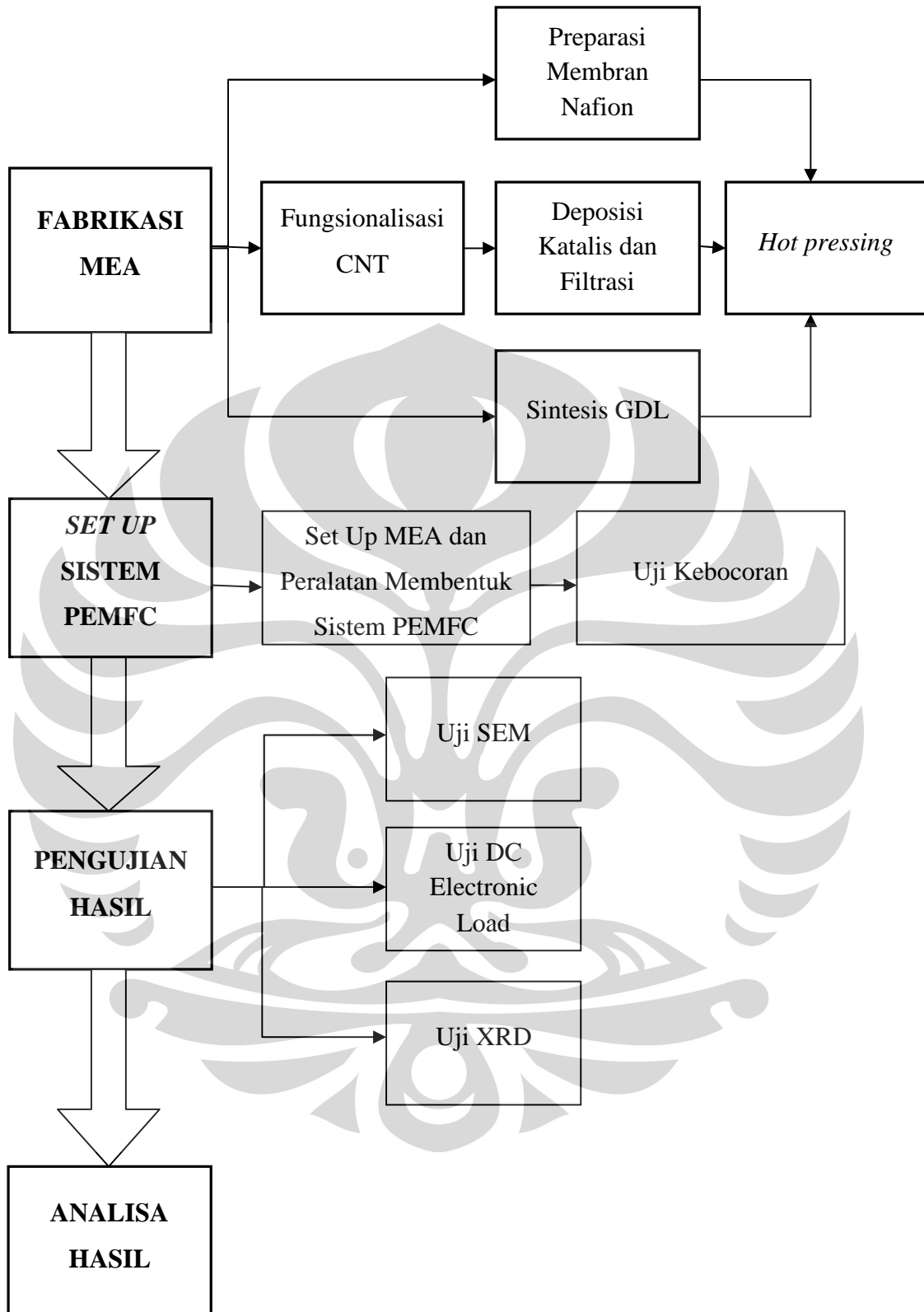
Pada penelitian mengenai PEMFC yang telah dilakukan sebelumnya, jenis karbon yang digunakan adalah *carbon black Vulcan XC 72*. Pada penelitian ini, jenis karbon yang akan digunakan adalah *multi walled carbon nanotube* (MWNT) yang diharapkan dapat meningkatkan kinerja PEMFC karena memiliki karakteristik-karakteristik khusus.

2. Jenis metode deposisi katalis

Metode deposisi yang diuji dalam penelitian ini berjumlah dua buah, yaitu metode deposisi koloidal dan metode deposisi *sputtering*. Kedua metode tersebut dikombinasikan dengan metode filtrasi CNT.

Sedangkan variabel terikat dalam penelitian ini adalah:

1. *Voltage dan current density*
2. Ukuran kristal Pt yang terdeposisi



**Gambar 3.1.** Diagram alir penelitian

## 3.2. RINCIAN KEGIATAN PENELITIAN

### 3.2.1. PREPARASI MEMBRAN

Alat dan Bahan :

1. *Beaker glass*
2. *Cutter*
3. Penjepit dan statif
4. *Hot Plate*
5. Membran nafion (DuPont Nafion PFSA *Membranes*) 117
6. Hidrogen peroksida 3% (Merck)
7. Asam sulfat 3% (Merck)
8. *Deionized water (DI)*



**Gambar 3. 2.** Proses Pencucian Membran Nafion

Prosedur :

1. Memanaskan 500 ml hidrogen peroksida, 500 ml asam sulfat, dan 4 × 500ml *deionized water* masing-masing dalam *beaker glass* sampai bersuhu 80°C - 90°C. Jaga agar suhu tetap.
2. Memotong membran sesuai ukuran yang diinginkan dengan melebihi 15%. Jangan sentuh bagian tengah membran.
3. Merendam membran dalam *deionized water* pertama selama satu jam. untuk semua perendaman, pastikan membran tidak menempel ke bagian dinding *beaker glass*.

4. Memindahkan membran secara hati-hati menggunakan penjepit ke dalam *beaker glass* berisi hidrogen peroksida. Rendam selama satu jam.
5. Mengulangi prosedur 3 dan 4 dengan urutan selanjutnya: asam sulfat, *deionized water* ke dua, *deionized water* ke tiga, dan *deionized water* ke empat.
6. Mengangkat membran dari bilasan terakhir dan meletakkannya di alas kaca. Simpan di tempat yang terlindung dari debu tetapi memungkinkan membran untuk kering.
7. Membiarkan membran kering selama satu malam.

### 3.2.2. FUNGSIONALISASI CNT

Alat dan Bahan :

1. CNT (Multi Walled Nanotube, OD < 8nm, Purity > 95%, Timesnano)
2. Larutan 98% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>
3. Larutan 70% HNO<sub>3</sub>
4. Deionized Water
5. Aseton
6. Kertas saring
7. *Beaker glass*

Prosedur :

1. Mencampurkan 80 mg CNT dengan 8 ml campuran 98% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> dan 70% HNO<sub>3</sub> (perbandingan 1:1). Pencampuran dilakukan pada *beaker glass* yang ditutup rapat selama 24 jam pada kondisi ambient dan bertujuan untuk mengoksidasi permukaan CNT.
2. CNT kemudian disaring, dicuci dengan deionized water dan aseton, lalu dikeringkan pada temperatur ruang.

### 3.2.3. DEPOSISI KATALIS DENGAN METODE KOLOIDAL

Alat dan Bahan :

1. CNT yang telah difungsionalisasi
2. Etilen glikol
3. *Hexachloroplatinic acid*, H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>

4. *Deionized water*
5. NaOH
6. Membran Nafion yang telah dipreparasi
7. Larutan 5% wt Nafion
8. Gelas beaker
9. Pengaduk magnetik/ultrasonik
10. *Oil bath*
11. Kertas saring polikarbonat hidrofilik berpori sebesar 0,4  $\mu\text{m}$

Prosedur :

1. 80 mg CNT yang telah terfungsionalisasi dicampurkan dengan 22 ml etilen glikol (EG) dan dicampur secara magnetik/ultrasonik hingga didapat larutan yang terdispersi sempurna.
2.  $\text{H}_2\text{PtCl}_6$  dilarutkan dalam air hingga mencapai 20% volume cairan total.
3. Larutan  $\text{H}_2\text{PtCl}_6$  dicampurkan ke dalam campuran CNT/EG hingga deposisi menghasilkan katalis Pt/CNT dengan loading 30% Pt.
4. NaOH dilarutkan ke campuran 20% volume air dalam EG hingga konsentrasi 1 M.
5. Larutan NaOH ditambahkan ke larutan Pt/CNT hingga mencapai pH 13.
6. Selanjutnya, larutan Pt/CNT dipanaskan dalam oil bath bersuhu 140°C selama 3 jam. Selama pemanasan, pH larutan Pt/CNT dijaga konstan dengan menambahkan larutan NaOH. Ketinggian larutan Pt/CNT pada gelas beaker dijaga konstan selama pemanasan dengan menambahkan campuran 20% volume air dalam EG.
7. Saat pH larutan Pt/CNT tak lagi berubah, larutan tersebut didinginkan pada suhu ruang, kemudian Pt/CNT disaring dan dikeringkan.
8. Pt/CNT dilarutkan dalam etanol, kemudian difilter dengan kertas saring polikarbonat. Karena CNT bersifat hidrofobik dan polikarbonat bersifat hidrofilik, CNT cenderung tersusun tegak lurus pada kertas saring.
9. Selanjutnya, Pt/CNT ditransfer dari kertas saring ke membran Nafion melalui proses hot pressing pada suhu 143°C dan tekanan 1.200 lbs selama 3 menit. Setelah Pt/CNT ditransfer ke membran Nafion, larutan 5% Nafion

disemprotkan ke permukaan Pt/CNT film hingga loading 1 mg Nafion kering/cm<sup>2</sup>.



**Gambar 3.3.** Deposisi katalis pada CNT dengan metode koloidal

#### **3.2.4. DEPOSISI KATALIS DENGAN METODE *SPUTTERING***

Alat dan Bahan :

1. CNT yang telah terfungsionalisasi
2. Etilen glikol
3. Larutan 5% wt Nafion
4. Membran Nafion yang telah dipreparasi
5. Kertas saring nylon hidrofilik berpori sebesar 0,2  $\mu\text{m}$
6. *Sputtering apparatus* Anatech<sup>®</sup> Hummer<sup>®</sup>
7. Gas argon

Prosedur :

1. 80 mg CNT yang telah terfungsionalisasi dicampurkan dengan 22 ml etanol dan dicampur secara magnetik/ultrasonik hingga didapat larutan yang terdispersi sempurna.
2. Larutan tersebut kemudian difilter dengan kertas saring polikarbonat hidrofilik berpori sebesar 0,4  $\mu\text{m}$ . Karena CNT bersifat hidrofobik dan polikarbonat bersifat hidrofilik, CNT cenderung tersusun tegak lurus pada kertas saring. Selanjutnya, kertas saring dengan CNT tersebut dikeringkan

sebelum dimasukkan ke *sputtering* chamber untuk menjalani proses deposisi katalis.

3. Meletakkan filter paper dengan permukaan yang mengandung CNT di sebelah atas pada dasar *sputtering chamber* dan menutup chamber dengan rapat.
4. Menyalakan *vacuum pump*.
5. Membuka aliran gas argon setelah tekanan mencapai 10 mTorr.
6. Melakukan prosedur *precleaning*, yaitu dengan menyalakan plasma RF selama 2 menit.
7. Mengatur semua parameter *sputtering*, meliputi daya dan ketebalan katalis yang diinginkan.
8. Menyalakan *plasma gun*, dan membiarkan proses berlangsung sampai ketebalan tercapai.
9. Setelah proses selesai, berturut-turut matikan saklar *plasma gun*, *switch* DC/RF, pompa vakum, dan aliran gas.
10. Menunggu sampai tekanan *chamber* mencapai kondisi atmosferik.
11. Membuka *chamber* dan mengambil kertas saring dengan CNT yang telah *ter-coating* dengan Pt.
12. Selanjutnya, Pt/CNT ditransfer dari kertas saring ke membran Nafion melalui proses hot pressing. Setelah Pt/CNT ditransfer ke membran Nafion, larutan 5% Nafion disemprotkan ke permukaan Pt/CNT film hingga loading 1 mg Nafion kering/cm<sup>2</sup>.



**Gambar 3. 4** Peralatan *Sputtering* Anatech® Hummer®



### 3.2.5. SINTESIS GDL

Alat dan Bahan :

1. Carbon paper (TORAY)
2. Larutan 5% wt PTFE (Fuel Cell Science)
3. Carbon Black Vulcan XC-72 (Fuel Cell Science)
4. Etilen glikol
5. *Deionized water*
6. Pengaduk ultrasonik

Prosedur :

1. *Carbon paper* berukuran 8 cm x 8 cm yang belum di-*pretreatment* dengan PTFE digunakan sebagai *backing layer*.
2. *Carbon paper* di-*pretreatment* dengan diolesi campuran larutan 5% wt PTFE, etilen glikol, dan *deionized water* hingga berat kering PTFE mencapai 10% berat *carbon paper*. Setelah itu, carbon paper di-*sintering* dengan pemanasan dalam *furnace* bersuhu 330°C selama 15 menit.
3. Larutan 5% wt PTFE dan *Carbon Black* XC-72 dicampur dalam etilen glikol dan *deionized water* dengan pengadukan ultrasonik (perbandingan Carbon Black XC-72 dan PTFE adalah 7 : 3, perbandingan etilen glikol dan air 1 : 1)
4. Slurry PTFE/*Carbon Black* disemprotkan pada carbon paper hingga tercapai loading Carbon Black XC-72 sebesar 4 mg/cm<sup>2</sup>. Setelah itu, carbon paper di-*sintering* dengan pemanasan dalam *furnace* bersuhu 330°C selama 15 menit.



**Gambar 3.5.** GDL yang telah di-spray dengan slurry PTFE-Carbon Black

### 3.2.6. *HOT PRESSING*

Alat dan Bahan :

1. Alat *hot press*
2. Elektroda
3. Membran Nafion yang telah dideposisikan dengan Pt/CNT

Prosedur :

1. Menyusun membran serta elektroda anoda dan katoda dengan susunan elektroda anoda-membran-elektroda katoda.
2. Menekan lapisan MEA pada 140 atm dan pemanasan pada suhu 135°C selama 1,5 menit.
3. Mendinginkan MEA setelah di-*hot press* dan MEA siap digunakan.



**Gambar 3. 1** Alat *Hot Press* CARVER (P3TKGBT)

### 3.2.8. *SET UP SISTEM DAN UJI KINERJA FUEL CELL (UJI SATU SEL)*

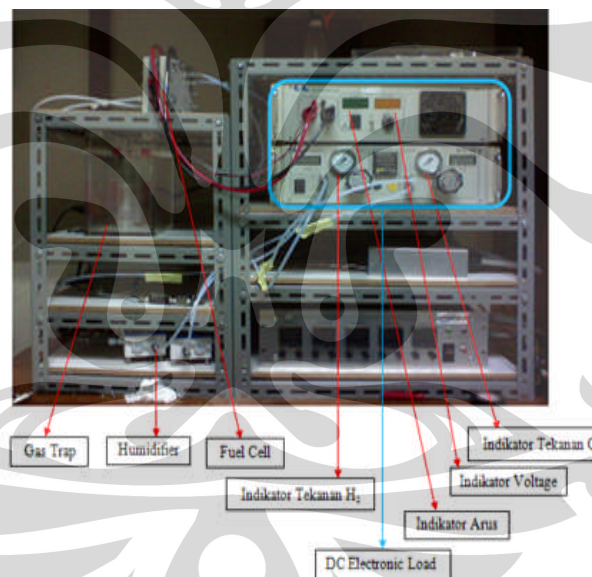
Alat dan bahan :

1. *Cell stack Fuel Cell* (Electrochem)
2. MEA yang telah difabrikasi
3. Kunci pas
4. *DC Electronic load*
5. Air sabun
6. Kuas kecil

7. Udara tekan, gas  $H_2$ ,  $O_2$ , dan  $N_2$

Prosedur :

1. Merangkai seluruh sistem *fuel cell*.
2. Melakukan tes kebocoran unit dan sistem *fuel cell* dengan cara mengalirkan  $N_2$ .
3. Menguaskan air sabun di setiap celah pada sambungan antara pelat bipolar serta pada tiap sambungan antar peralatan pada sistem.
4. Jika terjadi gelembung sabun, maka menandakan adanya kebocoran pada sistem.
5. Setelah kebocoran tidak terjadi, alirkan bahan bakar pada anoda dan oksigen atau udara tekan pada katoda.
6. Menjalankan *fuel cell* selama 6 jam.
7. Mengambil data volt dan arus menggunakan *DC electronic load*.



**Gambar 3. 7.** Foto Fuel cell dan Sistem Pengujian (P3TKEBT)

## BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1. ANALISA METODE KOLOIDAL

Pada metode koloidal, katalis Pt diimpregnasi pada CNT pada kondisi basa. Inti aktif Pt yang berasal dari  $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan CNT dicampurkan dalam larutan air dan etilen glikol, kemudian ditambahkan NaOH agar terbentuk kondisi basa. Larutan yang terbentuk kemudian dipanaskan hingga suhu  $140^\circ\text{C}$  dengan menambahkan NaOH sedikit demi sedikit untuk menjaga kondisi basa (Van Bruinessen, 2009).



**Gambar 4.1.** Penyaringan CNT yang telah diimpregnasi Pt dengan metode koloidal

Setelah pemanasan, CNT yang telah terimpregnasi dengan Pt disaring dengan menggunakan membran filter polikarbonat. Larutan yang tersisa setelah penyaringan berwarna kuning jernih. Hal tersebut sesuai dengan hasil eksperimen Li et al. yang juga menggunakan metode koloidal untuk mendeposisikan Pt pada *carbon nanofiber* (CNF) (Li et al., 2010). Gambar 4.1. memperlihatkan proses penyaringan tersebut. Setelah penyaringan, Pt/CNT dikeringkan dengan pemanasan pada suhu  $70^\circ\text{C}$ .

Setelah pengeringan, Pt/CNT langsung dilarutkan dalam etanol dan digunakan dalam tahap filtrasi dengan membran polikarbonat berpori 0,4  $\mu\text{m}$ . Pada awal penelitian, analisa persebaran Pt direncanakan akan dilakukan dengan *scanning electron microscopy* (SEM). Selain untuk melihat persebaran Pt, SEM juga dilakukan untuk melihat morfologi CNT pada membran Nafion. Sementara itu, keberadaan Pt pada CNT dan ukuran kristal Pt yang terbentuk direncanakan akan dilakukan dengan *X Ray Diffraction* (XRD).

Pada tahap filtrasi, jumlah Pt/CNT yang disaring disesuaikan dengan loading Pt yang diinginkan pada MEA, yaitu 0,085  $\text{mg}/\text{cm}^2$ . Jumlah *loading* tersebut disesuaikan dengan loading Pt optimum pada MEA yang dibuat dengan metode *sputtering*, karena kedua MEA tersebut direncanakan untuk dikomparasikan pada akhir penelitian. Namun, pada saat hot pressing membran polikarbonat dengan membran Nafion untuk mentransfer Pt/CNT ke membran Nafion, jumlah Pt/CNT yang berpindah ke membran Nafion hanya 62,3%.



**Gambar 4.2.** Kondisi kertas saring polikarbonat sebelum (kiri) dan sesudah (kanan) *hot pressing* dengan membran Nafion

Gambar 4.2. menunjukkan bahwa jumlah karbon dan platina yang tersisa pada kertas saring polikarbonat setelah *hot pressing* masih cukup besar sehingga kertas saring masih berwarna kehitaman.

## 4.2. ANALISA METODE SPUTTERING

Pada metode sputtering, filtrasi hanya dilakukan pada CNT yang dilarutkan dalam etanol. Setelah itu, katalis Pt dideposisikan di atas CNT pada membran polikarbonat dengan metode *sputtering*. Loading Pt yang digunakan adalah  $0,085 \text{ mg/cm}^2$ . Setelah proses *sputtering*, membran polikarbonat di- *hot press* dengan membran Nafion untuk memindahkan Pt/CNT ke membran Nafion. Pada MEA yang dibuat dengan teknik sputtering, jumlah Pt/CNT yang berpindah ke membran Nafion adalah 74,1 %. Gambar 4.3. menunjukkan membran Nafion yang berwarna transparan berubah menjadi kehitaman setelah *hot pressing*.



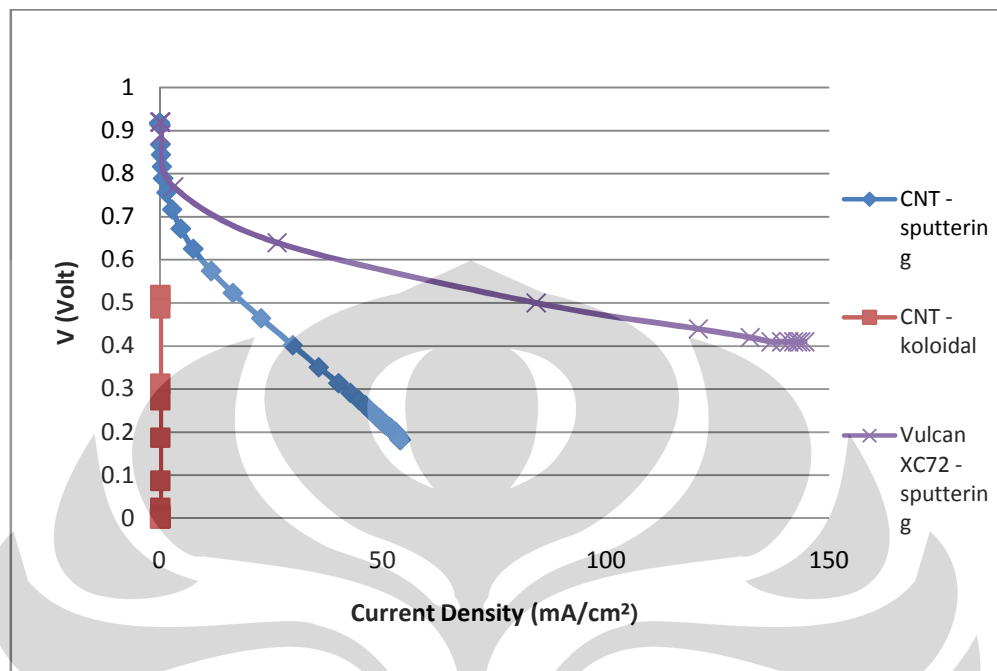
**Gambar 4.3.** Pt/CNT yang berpindah ke membran Nafion

Gambar 4.3. menunjukkan bahwa penempelan Pt/CNT tidak merata. Sebelum *hot pressing*, membran Nafion dibasahi dengan air untuk meningkatkan kelekatan Pt/CNT. Jika membran Nafion tidak dibasahi terlebih dahulu, Pt/CNT hamper tidak dapat menempel. Namun, pembasahan dengan cairan (baik air maupun alkohol) membuat membran Nafion berkerut sehingga pada beberapa bagian, membran Nafion tidak berkontak sempurna dengan membran polikarbonat selama *hot pressing* dan Pt/CNT tidak dapat menempel.

## 4.3. HASIL UJI SATU SEL

Uji satu sel merupakan pengukuran kinerja PEMFC yang dilakukan dengan cara mengukur tegangan dan arus yang dihasilkan PEMFC dalam kondisi pembebanan tertentu. Pada Laboratorium P3TKEBT, uji satu sel dilakukan

dengan instrumen *DC Electronic Load*. Hasil uji satu sel PEMFC dengan MEA hasil penelitian berupa kurva polarisasi pada Gambar 4.4.



**Gambar 4.4.** Kurva polarisasi hasil uji satu sel

Pada grafik tersebut, label CNT – *sputtering* dan CNT – koloidal menandakan MEA dengan CNT sebagai penyangga katalis dan metode deposisi katalis dengan teknik *sputtering* atau koloidal. Label Vulcan XC72 – *sputtering* menandakan MEA dengan penyangga katalis *carbon black* Vulcan XC72 dan metode deposisi katalis dengan teknik *sputtering*.

Gambar 4.4. menunjukkan bahwa PEMFC dengan MEA CNT – *sputtering* dan CNT – koloidal memiliki performa yang lebih rendah dari MEA Vulcan XC72 – *sputtering* dan MEA komersial. Hal ini dapat disebabkan oleh transfer katalis Pt yang kurang baik dari kertas saring polikarbonat menuju membran Nafion. Berdasarkan hasil pengukuran berat sebelum dan sesudah *hot pressing* kertas saring polikarbonat ke membran Nafion, transfer Pt/CNT dari kertas saring polikarbonat ke membran Nafion hanya sebesar 62,3 % pada CNT – koloidal dan 74,1 % pada CNT – *sputtering*.

Rendahnya jumlah Pt yang merekat di membran Nafion pada MEA CNT – koloidal menyebabkan performa PEMFC yang buruk. Berdasarkan perhitungan,

jumlah platina yang merekat pada membran Nafion setelah *hot pressing* dengan kertas saring polikarbonat hanya 0,0529 mg/cm<sup>2</sup>. Sementara itu, berdasarkan hasil-hasil penelitian sebelumnya, loading Pt yang ideal pada sistem PEMFC *sputtering* di Laboratorium P3TKEBT mencapai 0,085 mg/cm<sup>2</sup> (Jamal, 2008). Kecilnya jumlah katalis Pt pada MEA sangat berpengaruh pada performa PEMFC karena katalis Pt merupakan tempat terjadinya reaksi setengah sel pada katoda dan anoda (Litster, 2004).

Jumlah katalis Pt yang rendah dapat mengakibatkan permasalahan baik pada reaksi di bagian katoda maupun di bagian anoda. Pada bagian anoda, reaksi yang terjadi adalah oksidasi H<sub>2</sub>. mekanisme reaksi setengah sel tersebut adalah:

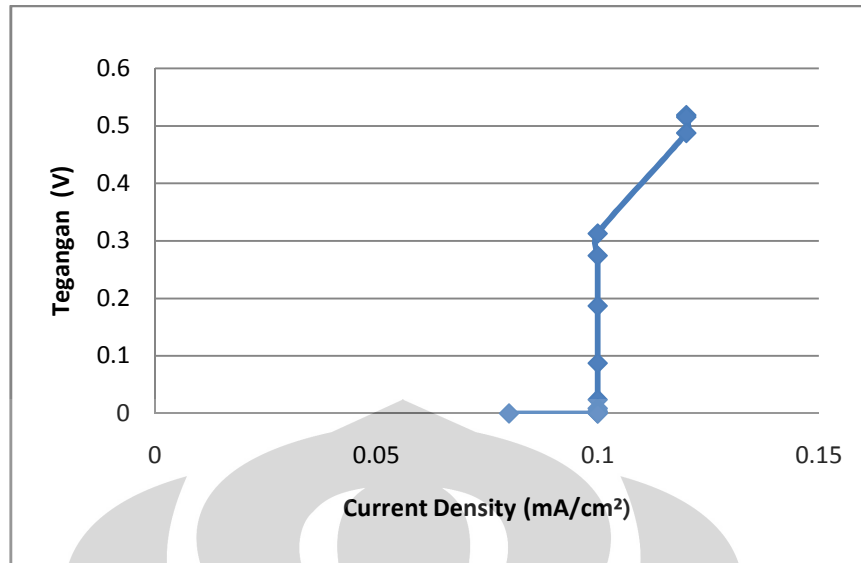


Pada reaksi tersebut, Cs adalah *catalyst site*. Jika tidak ada *catalyst site* pada anoda, reaksi oksidasi H<sub>2</sub> akan sangat sulit terjadi (Luczak, 2006).

Rendahnya jumlah katalis Pt di bagian anoda juga akan menghasilkan efek yang sama dengan yang terjadi pada anoda. Reduksi oksigen pada katoda PEMFC merupakan reaksi yang sangat lambat. *Exchange current density* pada reaksi reduksi oksigen sangat kecil, hanya mendekati 10<sup>-10</sup> A/cm<sup>2</sup>. Alasan penggunaan katalis platina pada katoda adalah luasnya area aktif Pt sehingga efektivitas katalis meningkat dan *current density* yang dihasilkan lebih besar. Tanpa Pt, reaksi reduksi oksigen akan berlangsung dengan sangat lambat sehingga *current density* yang dihasilkan sangat rendah (Luczak, 2006).

Pada MEA CNT – koloidal, jumlah Pt terlalu rendah sehingga kurva polarisasi sangat buruk. Gambar 4.2. menunjukkan kurva polarisasi MEA CNT – koloidal.

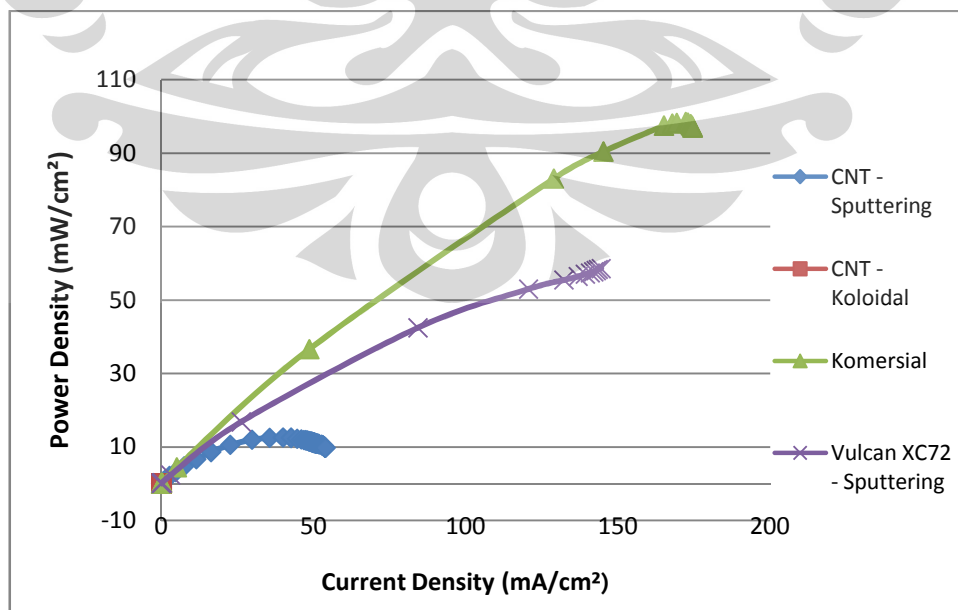




**Gambar 4.2.** Kurva polarisasi MEA CNT – koloidal

Gambar 4.2. menunjukkan bahwa *current density* mengalami penurunan bersamaan dengan turunnya tegangan. *Current density* yang rendah menandakan bahwa reaksi pada PEMFC hampir tidak terjadi.

Nilai tegangan dan *current density* yang dihasilkan oleh PEMFC berpengaruh pada power density. Power density merupakan jumlah daya yang dapat dihasilkan per satuan luas area aktif MEA. Gambar 4.3. menggambarkan kurva power density MEA dengan CNT, Vulcan XC72, dan komersial.



**Gambar 4.3.** Kurva power density

Power density maksimum yang dihasilkan oleh MEA CNT- koloidal hanya sebesar  $0,0031 \text{ mW/cm}^2$ . Sementara itu, power density maksimum yang dihasilkan MEA komersial, Vulcan XC72 – *sputtering*, dan CNT – *sputtering* berturut-turut adalah  $98,36 \text{ mW/cm}^2$ ,  $58,52 \text{ mW/cm}^2$ , dan  $12,57 \text{ mW/cm}^2$ . Rendahnya performa MEA dengan CNT sebagai penyangga katalis juga disebabkan oleh kecilnya jumlah katalis Pt yang terdeposisi pada membran Nafion.

#### 4.4. KEREKATAN CARBON PAPER PADA MEA

Ketahanan MEA terhadap pengelupasan carbon paper setelah pengujian selama 6 jam meningkat dibandingkan dengan hasil penelitian sebelumnya. Gambar 4.4. menunjukkan kondisi MEA sebelum dan sesudah pengujian dengan DC *Electronic Load*.



**Gambar 4.4.** Kondisi MEA sebelum (kiri) dan sesudah (kanan) pengujian dengan DC *Electronic Load*

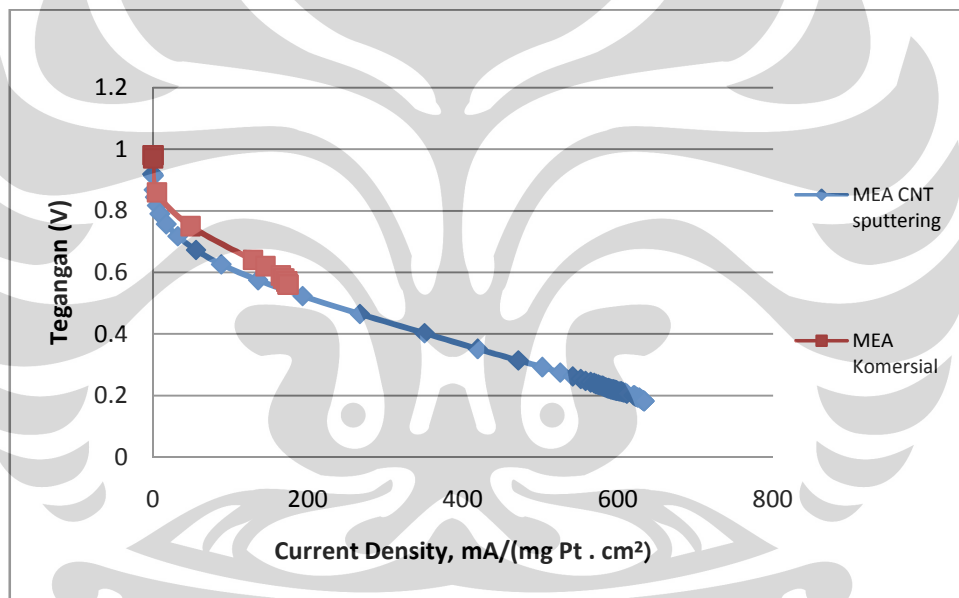
Pada penelitian sebelumnya, MEA yang dihasilkan mengalami kerusakan setelah pengujian dengan DC *Electronic Load* selama 6 jam karena carbon paper mengelupas dan terlepas dari membran Nafion. Hal tersebut disebabkan regulasi air yang buruk pada MEA (Wahyudi, 2009).

Untuk mengatasi problem tersebut, MEA pada penelitian ini difabrikasi dengan penambahan PTFE pada GDL. PTFE memiliki sifat hidrofobik sehingga dapat mendorong air yang dihasilkan dalam reaksi keluar dari MEA. Kadar PTFE yang digunakan pada MEA adalah 10% dari berat GDL. Jika kadar PTFE yang digunakan terlalu besar, transport elektron akan terhambat karena PTFE tidak

dapat menghantarkan elektron (Litster, 2004). Selain karena penggunaan PTFE, keberadaan CNT pada MEA juga dapat memperbaiki regulasi air. CNT memiliki sifat hidrofobik sehingga dapat mendorong air keluar dari MEA (Wang et al., 2006).

#### 4.5. PERBANDINGAN DENGAN MEA KOMERSIAL

Gambar berikut menunjukkan kurva polarisasi MEA CNT – *sputtering* dan MEA komersial (Electrochem). Loading Pt pada MEA komersial adalah  $1 \text{ mg/cm}^2$ , sementara loading Pt pada MEA CNT – *sputtering* hanya  $0,085 \text{ mg/cm}^2$ . Untuk membandingkan kedua MEA tersebut, *current density* pada kurva polarisasi dinyatakan dalam satuan  $\text{mA} / (\text{mg Pt} \cdot \text{cm}^2)$ .

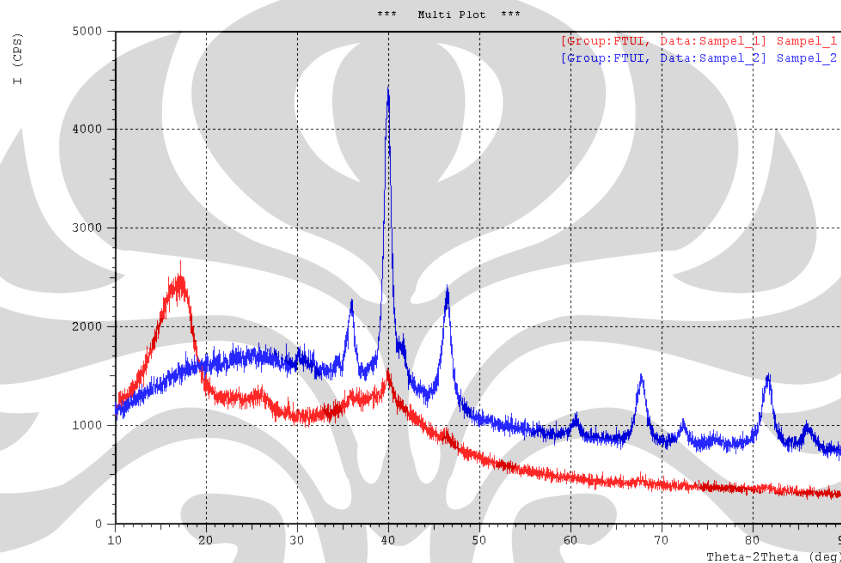


**Gambar 4.5.** Kurva polarisasi MEA CNT – *sputtering* dan MEA komersial untuk jumlah katalis yang sama

Gambar 4.5. menunjukkan bahwa tegangan yang dapat dihasilkan MEA CNT – *sputtering* masih berada di bawah tegangan yang dihasilkan MEA komersial untuk beban tertentu. Namun, *current density* yang dihasilkan MEA CNT- *sputtering* lebih baik. Hal tersebut menunjukkan bahwa efektivitas penggunaan katalis pada MEA CNT *sputtering* lebih baik dari MEA komersial.

#### 4.6. HASIL UJI X RAY DIFFRACTION (XRD)

Uji XRD dilakukan pada film Pt/CNT yang telah terdeposisi pada membran Nafion untuk mengetahui keberadaan katalis Pt. Selain itu, hasil uji XRD juga digunakan untuk mendapatkan ukuran kristal katalis Pt yang terdeposisi pada membran Nafion dengan persamaan Scherrer. Gambar 4.6. menunjukkan grafik hasil uji XRD untuk sampel CNT-*sputtering* dan CNT-koloidal.

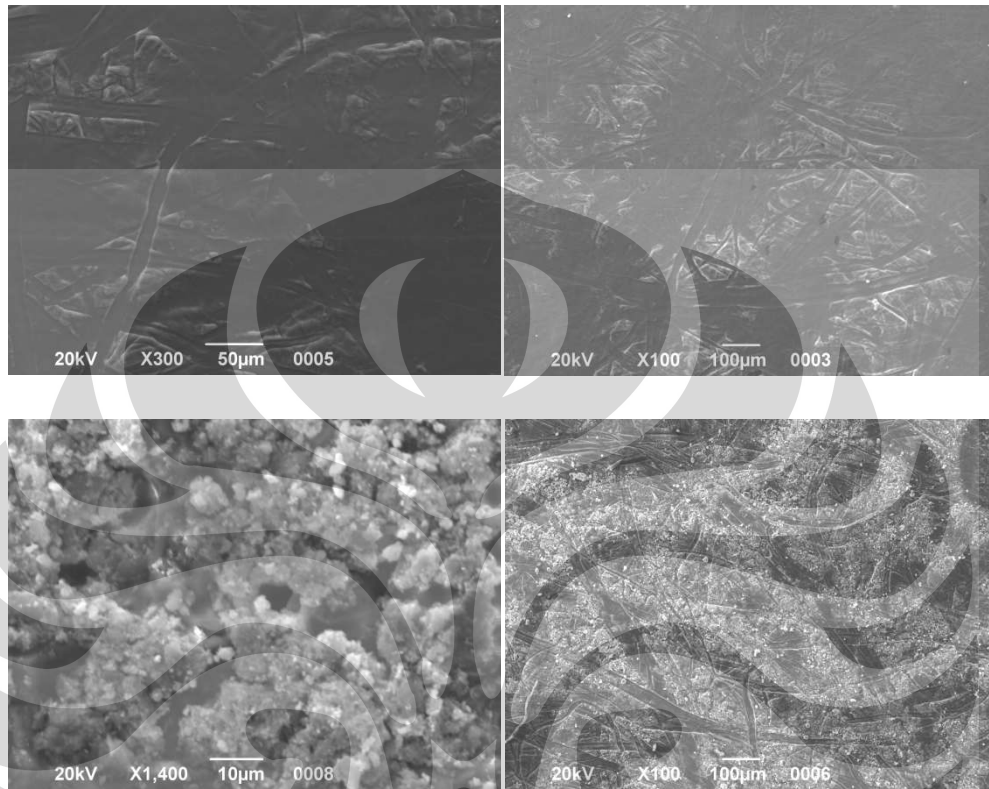


**Gambar 4.6.** Hasil uji XRD untuk sampel CNT-*sputtering* (merah) dan CNT-koloidal (biru)

Hasil perhitungan ukuran kristal menunjukkan bahwa MEA CNT – *sputtering* memiliki kristal Pt dengan ukuran 9,0939 nm, sementara MEA – koloidal memiliki Pt dengan ukuran kristal 10,5448 nm. Ukuran kristal yang lebih kecil menghasilkan luas area yang lebih besar sehingga luas area efektif yang dapat digunakan sebagai tempat reaksi setengah sel lebih luas. Reaksi setengah sel berpengaruh pada *current density* yang dihasilkan MEA, sehingga MEA CNT – *sputtering* menghasilkan *current density* yang lebih baik dari MEA CNT-koloidal. Hal tersebut dibuktikan oleh kurva polarisasi MEA CNT-*sputtering* yang lebih baik dari MEA CNT-koloidal.

#### 4.7. HASIL UJI *SCANNING ELECTRON MICROSCOPY* (SEM)

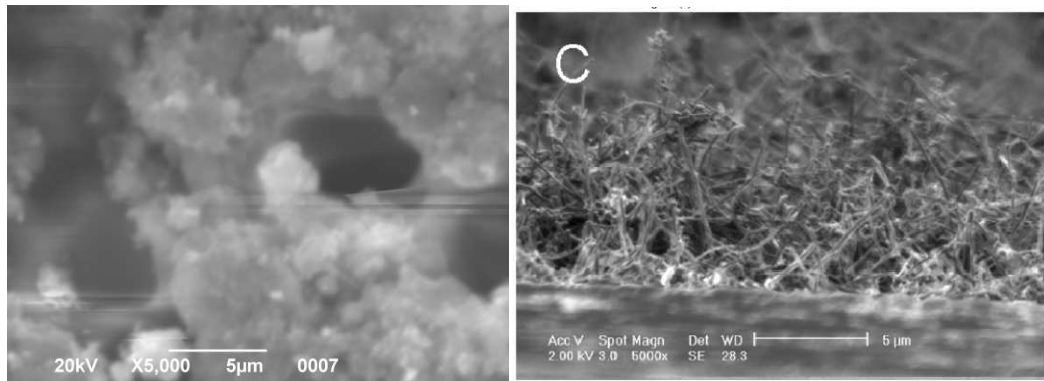
Hasil uji *scanning electron microscopy* (SEM) sampel membran Nafion yang telah di-*coating* dengan Pt/CNT terdapat pada Gambar 4.7.



**Gambar 4.7.** Morfologi Pt/CNT pada membran Nafion untuk sampel MEA CNT – *sputtering* (atas) dan MEA CNT – koloidal (bawah)

Berdasarkan hasil analisa SEM pada Gambar 4.7., coating Pt/CNT pada MEA CNT – *sputtering* lebih merata dibandingkan dengan MEA CNT – koloidal. Pada MEA CNT – *sputtering*, perbesaran tertinggi yang dapat dilakukan hanya 300 kali. *Coating* Pt/CNT yang sangat tipis menyebabkan membran Nafion terbakar oleh emisi elektron berintensitas tinggi jika perbesaran ditingkatkan.

Hasil analisa SEM pada sampel MEA CNT – koloidal menunjukkan bahwa CNT yang telah terimpregnasi oleh Pt tersusun dalam gumpalan-gumpalan. Gambar 4.8. menunjukkan morfologi Pt/CNT pada sampel MEA CNT – koloidal pada perbesaran 5.000 kali.



**Gambar 4.8.** Morfologi Pt/CNT pada sampel MEA CNT – koloidal hasil penelitian di P3TKEBT (kiri) dan MEA CNT – koloidal hasil penelitian internasional (kanan) (Li et al., 2005)

Kedua hasil SEM pada Gambar 4.8. menggunakan perbesaran yang sama, yaitu 5.000 kali. Berdasarkan perbandingan hasil tersebut, CNT pada penelitian ini belum terlihat membentuk orientasi hampir tegak lurus seperti pada penelitian Li et al. Berdasarkan hasil analisa XRD, ukuran kristal Pt pada MEA CNT – koloidal adalah 10,5448 nm. Sementara itu, CNT yang digunakan dalam penelitian ini memiliki diameter 2 hingga 8 nm. Hal tersebut menunjukkan bahwa *tube* CNT tertutup oleh kristal-kristal Pt yang berukuran lebih besar sehingga orientasi CNT tidak dapat terlihat.

Tabel 4.1. berisi komposisi lapisan Pt/CNT pada membran Nafion yang diperoleh dengan analisa *scanning electron microscopy – energy dispersive X-ray spectroscopy* (SEM – EDX).

**Tabel 4.1.** Komposisi lapisan Pt/CNT pada membran Nafion yang diperoleh dengan analisa SEM – EDX

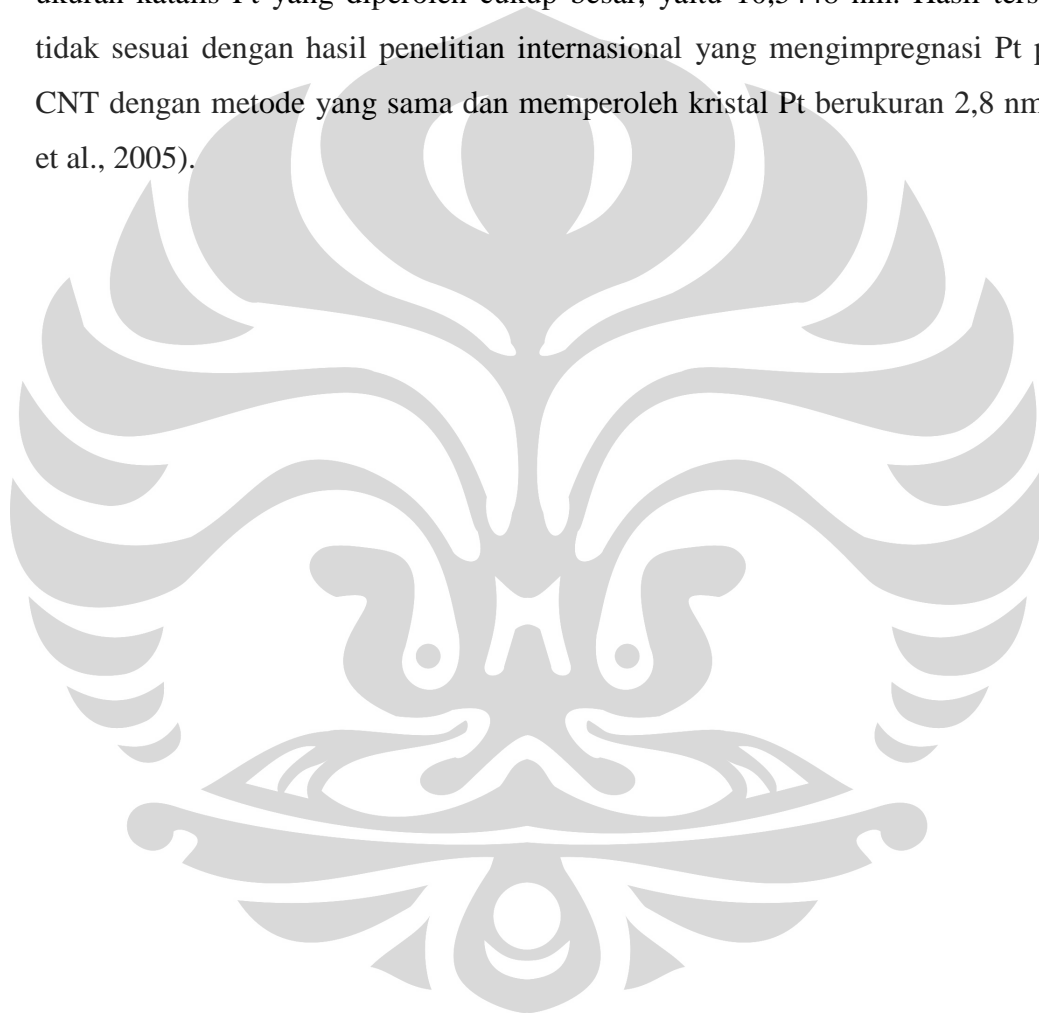
Sampel	Unsur	% massa unsur	% mol
MEA CNT - <i>sputtering</i>	C	36.38	50.38
	O	5.45	
	F	54.52	47.73
	S	3.64	1.89
MEA CNT - koloidal	C	49.22	93.69
	O	8.84	
	Si	2.01	1.63

---

Pt	39.93	4.68
----	-------	------

---

Pada MEA CNT – sputtering, katalis Pt tidak terdeteksi karena berada di antara lapisan CNT dan membran Nafion. Pada MEA CNT – koloidal, jumlah katalis Pt mencapai 39,93%. Hasil tersebut menandakan bahwa tahap impregnasi katalis Pt pada CNT terfungsionalisasi dengan metode koloidal telah berhasil. Namun, ukuran katalis Pt yang diperoleh cukup besar, yaitu 10,5448 nm. Hasil tersebut tidak sesuai dengan hasil penelitian internasional yang mengimpregnasi Pt pada CNT dengan metode yang sama dan memperoleh kristal Pt berukuran 2,8 nm (Li et al., 2005).



## BAB 5

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1. KESIMPULAN

Pada hasil penelitian dengan metode filtrasi, kurva polarisasi MEA CNT – koloidal dan MEA CNT – *sputtering* menunjukkan bahwa tegangan dan *current density* PEMFC yang dihasilkan masih rendah. Hal tersebut disebabkan transfer Pt/CNT dari membran polikarbonat ke membran Nafion yang belum sempurna. Secara teoritis, jika proses transfer dapat disempurnakan, peningkatan performa dapat dihasilkan. Kesimpulan yang dapat diambil dari hasil penelitian ini antara lain:

1. *Current density* MEA CNT – *sputtering* yang lebih tinggi dari MEA koloidal pada jumlah satuan katalis yang sama menunjukkan efektivitas penggunaan Pt yang lebih baik pada MEA CNT – *sputtering*.
2. Transfer Pt/CNT dari kertas saring polikarbonat ke membran Nafion hanya sebesar 62,3 % pada CNT – koloidal dan 74,1 % pada CNT – *sputtering*.
3. Power density maksimum yang dihasilkan Vulcan XC72 – *sputtering*, MEA CNT- koloidal, dan CNT – *sputtering* berturut-turut adalah 58,52 mW/cm<sup>2</sup>, 0,0031 mW/cm<sup>2</sup>, dan 12,57 mW/cm<sup>2</sup>. Power density maksimum yang dihasilkan MEA komersial adalah 98,36 mW/cm<sup>2</sup>.
4. MEA dengan CNT sebagai penyangga katalis memiliki kelekatan yang lebih tinggi terhadap carbon paper dalam uji DC *Electronic Load* sehingga tidak terjadi pengelupasan setelah uji selama 6 jam.

#### 5.2. SARAN

Performa PEMFC yang dihasilkan pada penelitian ini masih belum baik. Hal tersebut terutama disebabkan oleh kadar Pt yang rendah pada MEA. Untuk mengantisipasi transfer Pt/CNT yang rendah saat *hot pressing* kertas saring polikarbonat dengan membran Nafion, sebaiknya jumlah Pt/CNT yang dideposisikan pada kertas saring polikarbonat diperbanyak. Jika jumlah Pt/CNT yang berpindah ke membran Nafion meningkat, performa PEMFC diharapkan



dapat meningkat karena *catalyst site* tempat terjadinya reaksi setengah sel bertambah. Selain itu, metode yang digunakan dalam impregnasi Pt ke CNT sebaiknya disempurnakan untuk mengatasi masalah ukuran kristal katalis Pt yang cukup besar pada MEA CNT – koloidal.



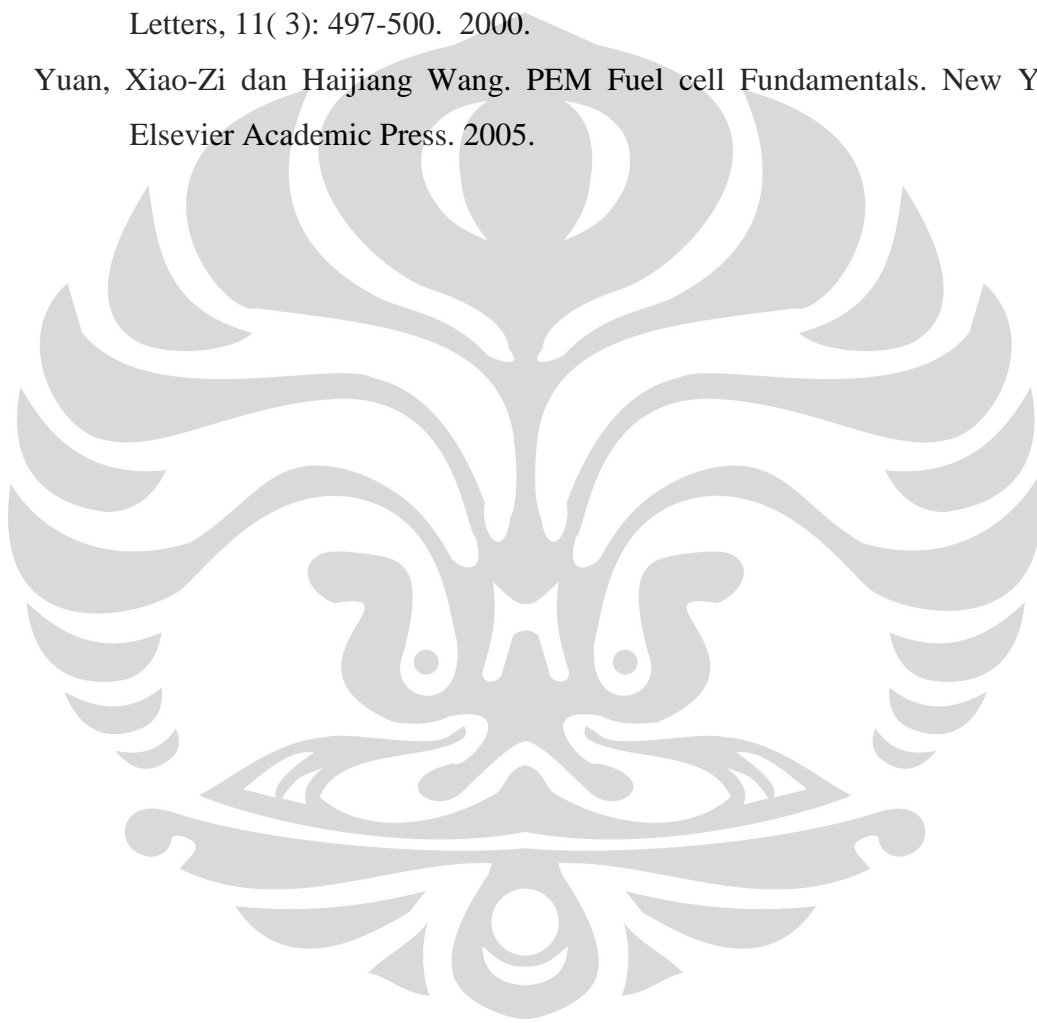
## DAFTAR REFERENSI

- Barbir, Frano. PEM Fuel cells. New York: Elsevier Academic Press. 2005.
- Bhushan, B., dan Gupta, B.K. Coating Deposition From Vapor Phase. Hand Book Of Tribology: Materials, Coatings, and Surface Treatments. Florida: Krieger Publishing Company. 1997.
- Bossel, U. The Birth of The Fuel Cell. European Fuel Cell Forum: Oberrohrdorf. 2000.
- Budevski, E. Structural Aspects of Fuel Cell Electrodes. Journal of Optoelectronics and Advanced Materials, 5, 1319 – 1325. 2003.
- Carrette, L., Friedrich, K.A., dan U. Stimming. Fuel cells – Fundamentals and Applications. Fuel cells, 1: 5-39. 2001.
- Choi, K.H., Kim, H.S., dan Lee, T.H. Electrode fabrication for proton exchange membrane fuel cells by pulse electrodeposition. Journal of Power Sources, 75( 2): 230-235. 1998.
- Dhathathreyan, K.S., dan N. Rajalakshmi. Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell. New Delhi : Anamaya Publishers. 2009.
- Energy Information Association (EIA). International Energy Outlook 2008. USA:EIA. 2008.
- Girishkumar, G., Matthew Rettker, Robert Underhile, David Binz, K. Vinodgopal, Paul McGinn,dan Prashant Kamat. Single-Wall Carbon Nanotube-Based Proton Exchange Membrane Assembly for Hydrogen Fuel Cells. Langmuir, 21, 8487-8494. 2005.
- Haug, Andrew T. et. al. Increasing Proton Exchange Membrane Fuel Cell Catalyst Effectiveness Through Sputter Deposition. Journal of The Electrochemical Society, 149: 280-287. 2002.
- Hirano S., Kim, J., and Srinivasan, S. High performance proton exchange membrane fuel cells with sputter-deposited Pt layer electrodes. Electrochimica Acta, 42(10): 1587-1593. 1997.
- International Energy Agency (IEA). Key World Energy Statistics. Paris : IEA. 2008.

- Kannan, Ramaiyan dan Vijayamohan K. Pillai. Applications of carbon nanotubes in polymer electrolyte membrane fuel cells. *Journal of the Indian Institute of Science*, Vol 89:4. 2009.
- Keenan, David. Fuel Cell Companies, Minnesota Futurists Financial Futures SIG, USA, 10/01/2004.
- Koprinarov, N., M. Konstantinova, G. Pchelarov, dan M. Marinov. Fullerene Structures Suitable For Fuel Cells Electrodes. *Full Cell Technologies: State and Perspectives*. 81-95. Netherlands: Springer. 2005.
- Li, Wenzhen, Xin Wang, Zhongwei Chen, Mahesh Waje, dan Yushan Yan . Carbon Nanotube Film by Filtration as Cathode Catalyst Support for Proton-Exchange Membrane Fuel Cell. *Langmuir*, 21, 9386-9389. 2005.
- Litster, S. and McLean, G. Review: PEM Fuel Cell Electrodes. *J. Power Sources*, 130: 61-76. 2004.
- Luczak, F. J., dan S. Sarangapani. *Electrocatalysis of Fuel Cell Reactions*. New York: Elsevier Academic Press. 2006.
- Mathur, Virendra K. dan Jim Crawford. *Fundamentals of Gas Diffusion Layers in PEM Fuel Cells*. New Delhi : Anamaya Publishers. 2009.
- Moreira, J., Sebastian, P.J., Ocampo, A.L., Castellanos, R.H., Cano, U. and Salazar, M.D. Dependence of PEM Fuel Cell Performance on the Configuration of the Gas Diffusion Electrodes. *J. New Materials for Electrochemical Systems*, 5, 173-175. 2002.
- O'Connell, Michael J. *Carbon Nano Tubes : Property and Applications*. London: Taylor and Francis. 2006.
- Rajesh, B., K. Ravindranathan Thampi, J.-M. Bonard, N. Xanthopoulos, H. J. Mathieu, and B. Viswanathan. Carbon Nanotubes Generated from Template Carbonization of Polyphenyl Acetylene as the Support for Electrooxidation of Methanol. *J. Phys. Chem.* 107: 2701-2708. 2003.
- Rayment, C. and Sherwin, S. *Introduction to Fuel Cell Technology*. Departement of Aerospace and Mechanical Engineering University of Notredame. USA. 2003.

- Reddy, A. Leela Mohana dan S. Ramaprabhu. Pt/SWNT-Pt/C Nanocomposite Electrocatalysts for Proton-Exchange Membrane Fuel Cells. *J. Phys. Chem.*, 111, 16138-16146. 2007.
- Reddy, A. Leela Mohana dan S. Ramaprabhu. Pt/SWNT-Pt/C Nanocomposite Electrocatalysts for Proton-Exchange Membrane Fuel Cells. *J. Phys. Chem.*, 111, 16138-16146. 2007.
- Shen, Pei Kang. PEM Fuel Cell Catalyst Layers and MEAs. New York: Elsevier Academic Press. 2008.
- Shiple, Anna Monis et al. Stationary Fuel Cells: Future Promise, Current Hype, American Council for an Energy-Efficient Economy. Washington D.C. 2004.
- Srinivasan, S., L. Krishnan dan C. Marozzi. Fuel Cell Principles. New York: McGraw Hill. 1995.
- Tanaka, Ken-ichi et. al. A CO-Tolerant Hydrogen Fuel Cell System Designed by Combining with an Extremely Active Pt/CNT Catalyst. *Catal Lett*, 127:148–151. 2009.
- Tang, Jason M. et. al. High Performance Hydrogen Fuel Cells with Ultralow Pt Loading Carbon Nanotube Thin Film Catalysts. *J. Phys. Chem.*, 111: 17901-17904. 2007.
- Tonn, Bruce dan Das Sujit. An Assessment of Platinum Availability for Advanced Fuel Cell Vehicles, Oak Ridge, Tenn.: Oak Ridge National Laboratory. 2001.
- United Technologies Corporation, Benefits of the PC 25 Fuel Cell Power Plant, <http://www.utcfuelcells.com/commercial/>, South Windsor Conn.: United Technologies Corporation, 2002.
- Van Bruinessen, Andrea.. Development of Pt/CNT Catalyst and Transport Kinetic Characterization of PEMFC Catalyst Layer. Queen's University, Canada. 2009
- Villers, D., S. H. Sun, A. M. Serventi, dan J. P. Dodelet. Characterization of Pt Nanoparticles Deposited onto Carbon Nanotubes Grown on Carbon Paper and Evaluation of This Electrode for the Reduction of Oxygen. *J. Phys. Chem.*, 110, 25916-25925. 2006.

- Wang , Cheng, et al. Proton Exchange Membrane Fuel Cells with Carbon Nanotube Based Electrodes. *Nano Letters*, 4, 345-348. 2004.
- Wang, Jiajun et. al. Investigation of Further Improvement of Platinum Catalyst Durability with Highly Graphitized Carbon Nanotubes Support. *J. Phys. Chem*, 112: 5784-5789. 2008.
- Witham, C.K. et. al. Performance of Direct Methanol Fuel Cells with Sputter Deposited Anode Catalyst Layers. *Electrochemical and Solid-State Letters*, 11( 3): 497-500. 2000.
- Yuan, Xiao-Zi dan Haijiang Wang. *PEM Fuel cell Fundamentals*. New York: Elsevier Academic Press. 2005.



## LAMPIRAN

### Lampiran 1. Data Polarisai DC E-Load

<b>Ukuran</b>			
		:	<b>50 cm<sup>2</sup></b>
<b>Cell Stack</b>		:	<b>Electrochem</b>
<b>MEA</b>		:	<b>CNT</b>
<b>Temperatur Cell</b>		:	<b>40<sup>0</sup> C</b>
<b>Tekanan H2</b>		:	<b>10 Psia</b>
<b>Tekanan O2</b>		:	<b>10 Psia</b>
<b>Load (beban)</b>	<b>Voltage (V)</b>	<b>Current Density d(mA/cm<sup>2</sup>)</b>	<b>Power Density (mW/cm<sup>2</sup>)</b>
Off	0.98	0	0
0	0.98	0	0
1	0.98	0.16	0.16
2	0.98	0.18	0.18
3	0.98	0.18	0.18
4	0.97	0.28	0.27
4.6	0.86	5.18	4.47
5.2	0.75	48.68	36.61
5.8	0.64	129	83.08
6	0.62	145.24	90.34
6.6	0.59	165.1	97.41
6.8	0.58	167.9	98.05
7	0.58	169.4	98.25
7.6	0.57	172.26	98.36
7.8	0.57	172.6	98.21
8	0.57	173.04	98.29
8.6	0.56	173.84	97.87
8.8	0.56	174.02	97.8
9	0.56	174.1	97.5
9.6	0.56	174.4	97.32
9.8	0.56	174.5	97.02
10	0.56	174.6	96.9

<b>Ukuran</b>	<b>:</b>	<b>50 cm<sup>2</sup></b>	
<b>Cell Stack</b>	<b>:</b>	<b>Electrochem</b>	
<b>MEA</b>	<b>:</b>	<b>Vulcan XC-72</b>	
<b>Temperatur Cell</b>	<b>:</b>	<b>40<sup>0</sup> C</b>	
<b>Tekanan H2</b>	<b>:</b>	<b>10 Psia</b>	
<b>Tekanan O2</b>	<b>:</b>	<b>10 Psia</b>	
<b> </b>			
<b>Load (beban)</b>	<b>Voltage (V)</b>	<b>Current Density d(mA/cm<sup>2</sup>)</b>	<b>Power Density (mW/cm<sup>2</sup>)</b>
Off	0.92	0	0
0	0.92	0.16	0.15
1	0.92	0.18	0.17
2	0.92	0.18	0.17
3	0.92	0.18	0.17
4	0.89	0.26	0.23
4.5	0.77	3.12	2.39
5	0.64	26.3	16.78
5.5	0.5	84.34	42.42
6	0.44	120.64	52.96
6.5	0.42	132.28	55.43
7	0.41	136.94	56.42
7.5	0.41	139.34	56.99
8	0.41	140.94	57.36
8.5	0.41	142.04	57.67
9	0.41	142.88	58.01
9.5	0.41	143.6	58.3
10	0.41	144.5	58.52

## Lampiran 2. Perhitungan Ukuran Kristal Pt

Perhitungan ukuran diameter kristal Pt menggunakan persamaan sherrer

$$L = \frac{0,9 \lambda}{(\beta \cos \theta)}$$

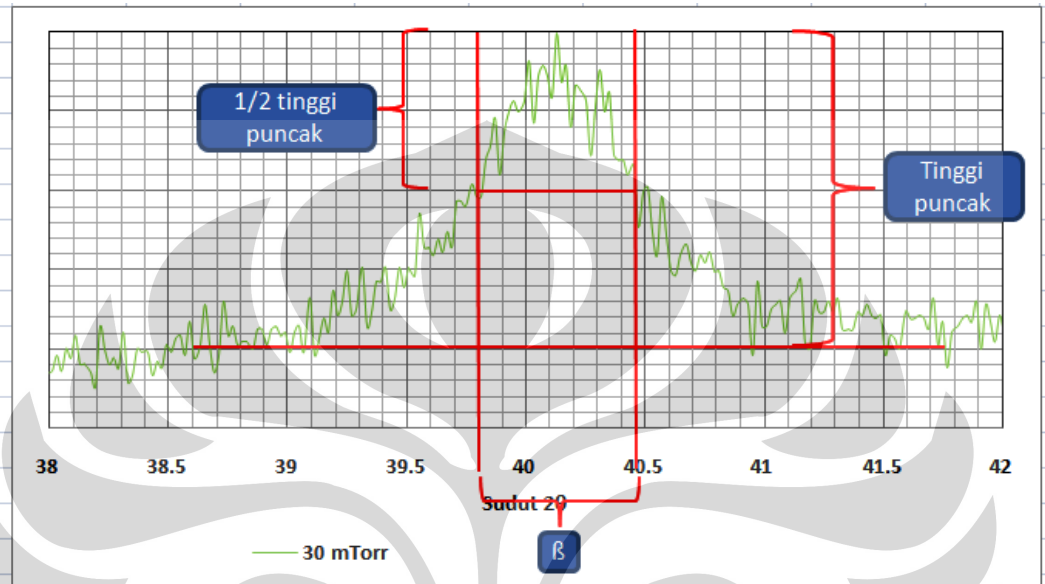
di mana :

L = ukuran kristal (nm)

$\lambda$  = panjang gelombang radiasi sinar X yang digunakan

- $\beta$  = lebar dari setengah puncak gelombang tertinggi  
 $\theta$  = sudut puncak

### Contoh perhitungan



Jenis MEA	Sudut (2θ)	d-value (Å)	$\beta$	$\beta$ (rad)	Ukuran Kristal (nm)
CNT - sputtering	38,1600	2,35646	0,900	0,015708	<b>9,0939</b>
CNT - koloidal	39,8820	2,25860	0,780	0,013619	<b>10,5448</b>

### Lampiran 3. Data Analisa XRD



## \*\*\* Basic Data Process \*\*\*

Group : FTUI  
Data : Sampel\_1

# Strongest 3 peaks							
no. peak	2Theta	d	I/I <sub>1</sub>	FWHM	Intensity	Integrated Int	
no.	(deg)	(Å)		(deg)	(Counts)	(Counts)	
1	2	10.0133	0.34384	100	4.31440	440	102894
2	11	39.9358	2.25588	42	2.04170	180	20761
3	16	38.1600	2.38646	21	0.00000	93	0

# Peak Data List							
peak no.	2Theta (deg)	d (Å)	I/I <sub>1</sub>	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)	
1	10.0000	0.34614	4	0.04000	10	1340	
2	10.0133	0.34384	100	4.31440	440	102894	
3	20.0400	4.31440	0	0.04000	20	1800	
4	23.3700	3.00337	0	0.00000	20	1817	
5	28.0100	2.43000	10	2.00000	93	8420	
6	28.0000	2.43140	4	0.40000	10	377	
7	33.0000	2.70401	3	0.40000	10	400	
8	34.0000	2.59033	7	1.41340	31	2216	
9	35.0000	2.50488	10	1.40000	82	10896	
10	38.1600	2.38646	21	0.00000	93	0	
11	39.9358	2.25588	42	2.04170	180	20761	
12	41.7000	2.16423	17	0.00000	78	0	
13	43.3000	2.00515	10	2.00000	45	7355	
14	46.2325	1.90208	0	1.00000	40	2583	
15	47.0000	1.86406	4	0.70000	20	876	
16	81.3700	1.18182	3	0.74000	15	940	

## \*\*\* Basic Data Process \*\*\*

## # Data Information

Group : PPTI  
 Data : Sampel\_1  
 Sample Name : Sampel\_1  
 Comment :  
 Date & Time : 07-08-18 13:33:33

## # Measurement Condition

## X-ray tube

target : Cu  
 voltage : 40.0 (kV)  
 current : 10.0 (mA)

## Slits

Ante slit : not used  
 divergence slit : 1.0000 (deg)  
 scatter slit : 1.0000 (deg)  
 receiving slit : 0.1000(mm)

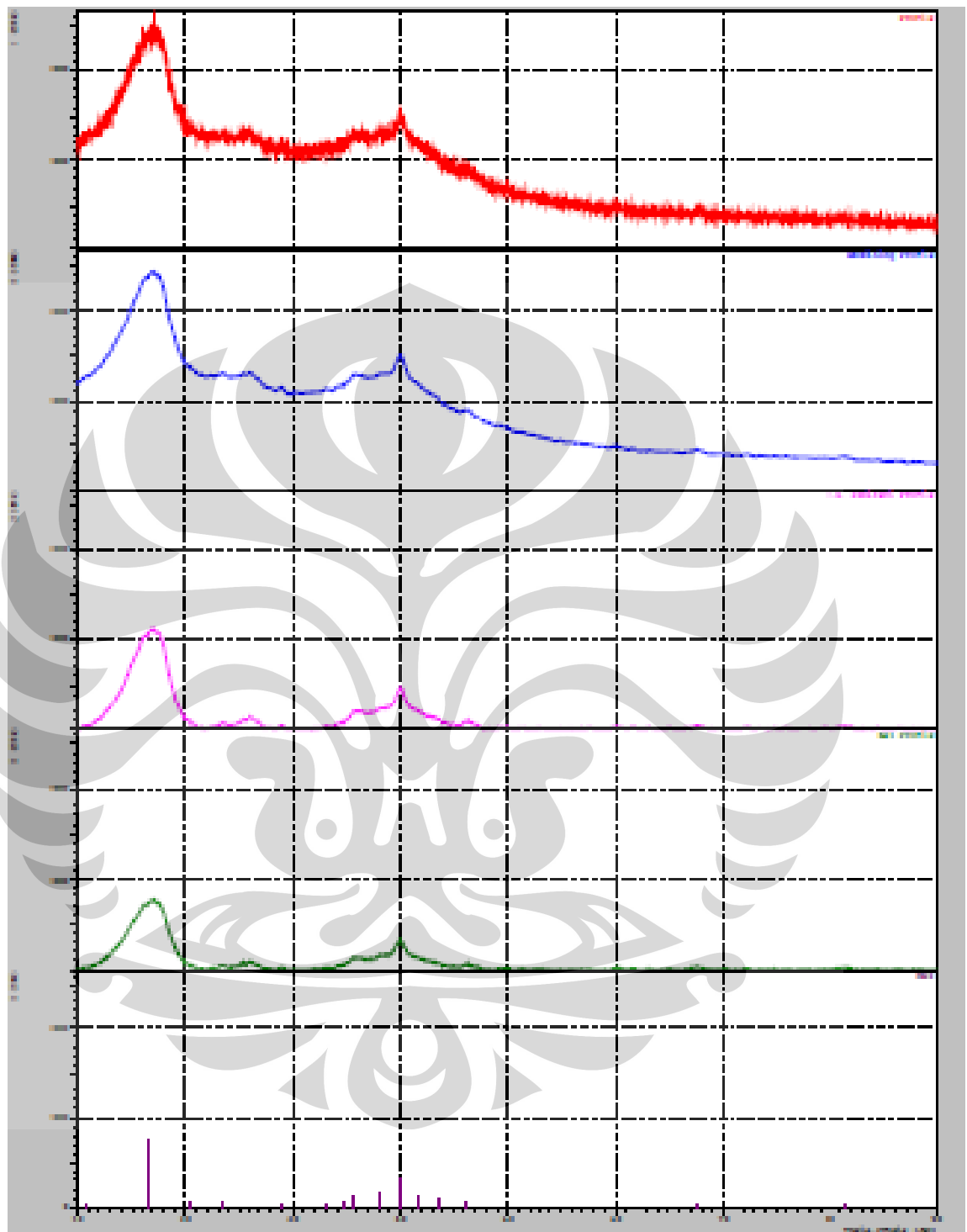
## Scanning

drive axis : Theta-2Theta  
 scan range : 10.0000 - 80.0000 (deg)  
 scan mode : Continuous Scan  
 scan speed : 2.0000 (deg/min)  
 sampling pitch : 0.0200 (deg)  
 preset time : 0.60 (sec)

## # Data Process Condition

Smoothing [ AUTO ]  
 smoothing points : 51  
 S.D.Subtraction [ AUTO ]  
 sampling points : 51  
 repeat times : 30  
 Kal-n2 Separate [ MANUAL ]  
 Kal n2 ratio : 50 (%)  
 Peak Search [ MANUAL ]  
 differential points : 51  
 FWHM threshold : 0.050 (deg)  
 intensity threshold : 30 (per mil)  
 FWHM ratio (n-1)/n : 2  
 System error Correction [ NO ]  
 Precise peak Correction [ NO ]

Group: FTUI Data: Sampel\_1



## \*\*\* Basic Data Process \*\*\*

Group : PPO1  
Data : Sampel\_2

## # Strongest 3 peaks

no. peak	2 $\theta$ (deg)	d (Å)	I/I <sub>1</sub>	PPO1 (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	18.8820	4.73000	100	0.97300	1154	62298
2	46.3469	1.97748	38	1.13989	439	36936
3	38.8489	3.62331	34	1.66839	373	18990

## # Peak Data List

peak no.	2 $\theta$ (deg)	d (Å)	I/I <sub>1</sub>	PPO1 (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	18.8820	4.73000	4	1.36000	80	4831
2	17.1800	5.18331	4	0.00000	48	0
3	17.4000	5.07016	4	0.00000	48	0
4	17.8300	4.83844	8	0.00000	84	0
5	19.3000	4.58889	8	0.00000	84	0
6	21.0000	4.23160	8	0.00000	83	0
7	22.8400	3.97188	8	0.00000	83	0
8	25.0000	3.63896	6	0.00000	67	0
9	26.1200	3.48884	5	0.00000	56	0
10	27.5200	3.29852	4	1.13344	46	4862
11	30.5000	2.97799	5	1.42800	60	4265
12	31.5000	2.92662	3	0.73000	40	1616
13	34.3000	2.67230	4	0.50000	47	1610
14	38.8489	2.62331	34	1.66839	373	18990
15	38.8820	2.75860	100	0.97300	1154	62298
16	41.4000	2.17520	15	1.04000	169	13433
17	46.3469	1.97748	38	1.13989	439	36936
18	48.4358	1.93053	5	0.97839	63	3976
19	67.6450	1.38388	21	1.35000	244	17376
20	73.2226	1.34702	6	0.94134	69	3855
21	80.2200	1.18564	4	1.02000	49	4251
22	81.4481	1.18049	23	1.33184	271	18147
23	83.9850	1.13943	7	1.31000	68	6290

\*\*\* Basic Data Process \*\*\*

# Data Information

Group : 0001  
 Date : Sample\_2  
 Sample Name : Sample\_2  
 Comment :  
 Date & Time : 07-08-10 14:10:00

# Measurement Condition

X-ray tube

target : Cu  
 voltage : 40.0 (kV)  
 current : 20.0 (mA)

Slits

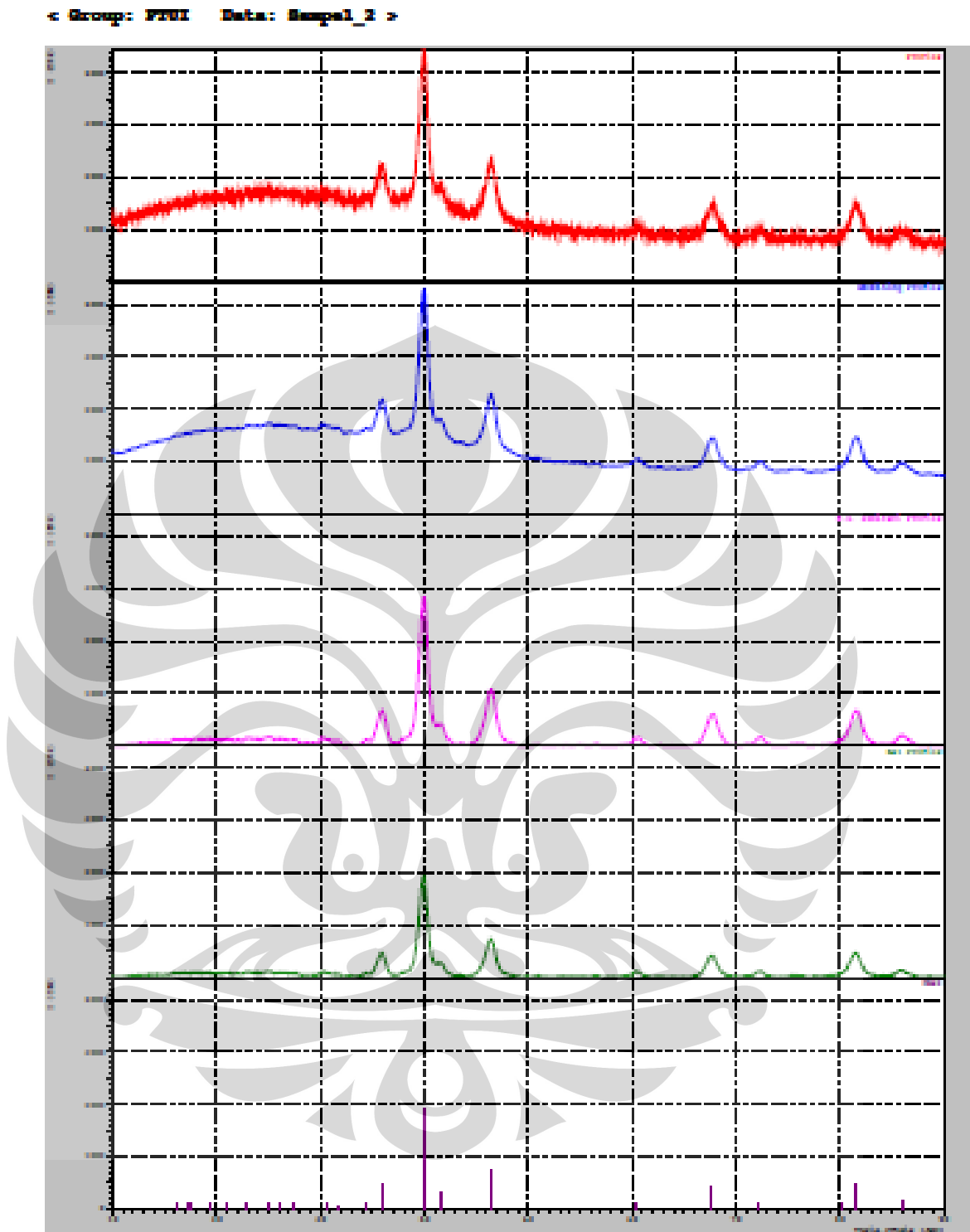
Ante slit : not used  
 divergence slit : 1.00000 (deg)  
 scatter slit : 1.00000 (deg)  
 receiving slit : 0.15000 (mm)

Scanning

drive axis : Theta-2Theta  
 scan range : 10.0000 - 90.0000 (deg)  
 scan mode : Continuous Scan  
 scan speed : 2.0000 (deg/min)  
 sampling pitch : 0.0200 (deg)  
 preset time : 0.60 (sec)

# Data Process Condition

Smoothing [ AUTO ]  
 smoothing points : 51  
 R.G.Subtraction [ AUTO ]  
 sampling points : 51  
 repeat times : 30  
 Kal-a2 Separate [ MANUAL ]  
 Kal a2 ratio : 50 (%)  
 Peak Search [ MANUAL ]  
 differential points : 51  
 FWHM threshold : 0.050 (deg)  
 intensity threshold : 30 (per mil)  
 scan ratio (p-1)/n : 2  
 System error Correction [ NO ]  
 Precise peak Correction [ NO ]

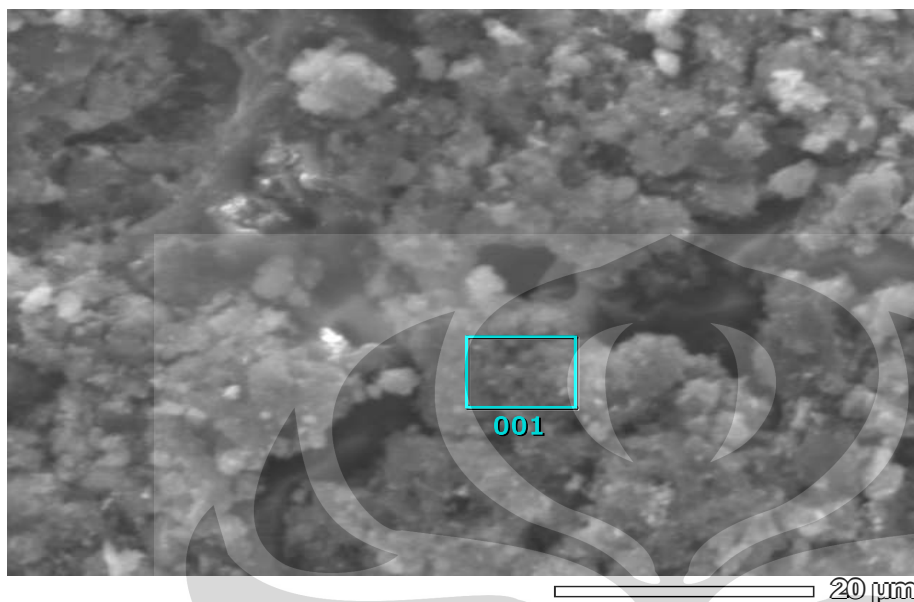


## Lampiran 4. Data Analisa SEM - EDX

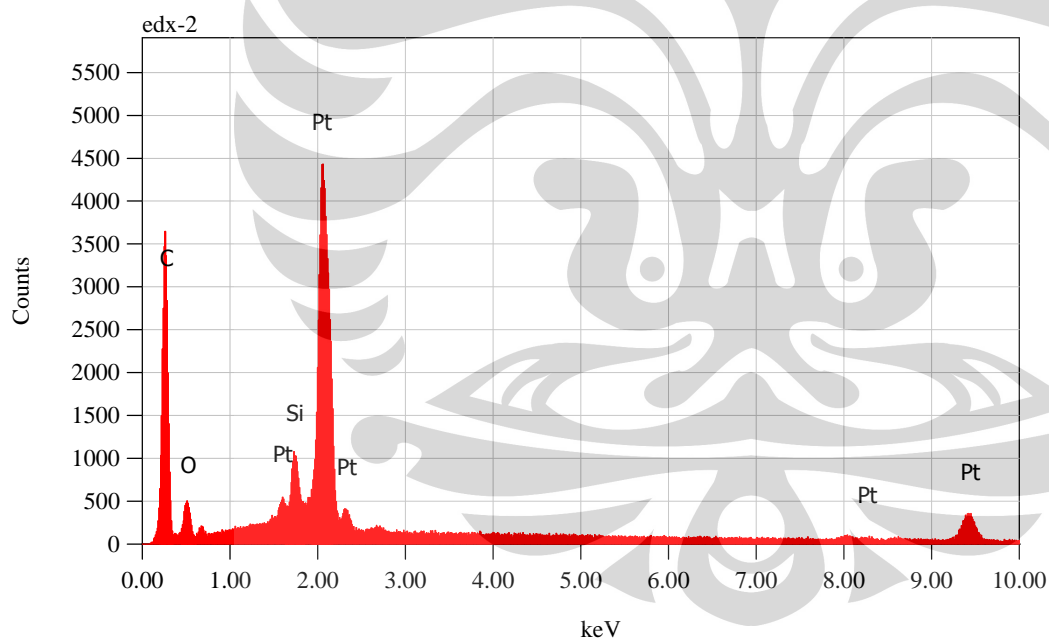
1/1

View000

Title : IMG2



Instrument :  
Volt : 20.00 kV



Acquisition Parameter  
Instrument : 6390(LA)  
Acc. Voltage : 20.0 kV  
Probe Current: 1.00000 nA  
PHA mode : T3  
Real Time : 46.49 sec  
Time : 00:00

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)

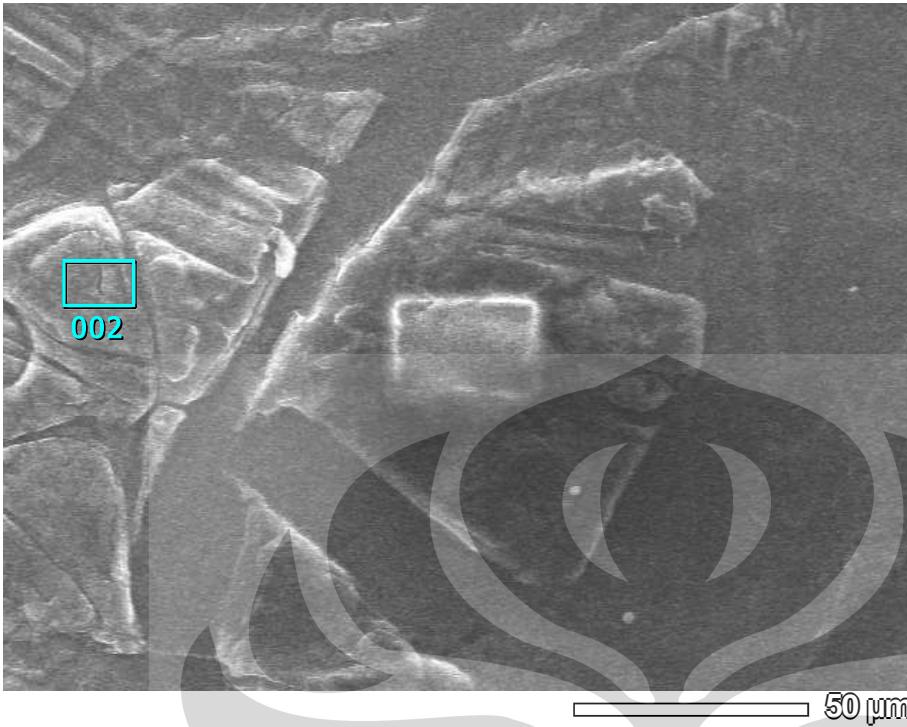
Fitting Coefficient : 0.3797

Total Oxide : 24.0

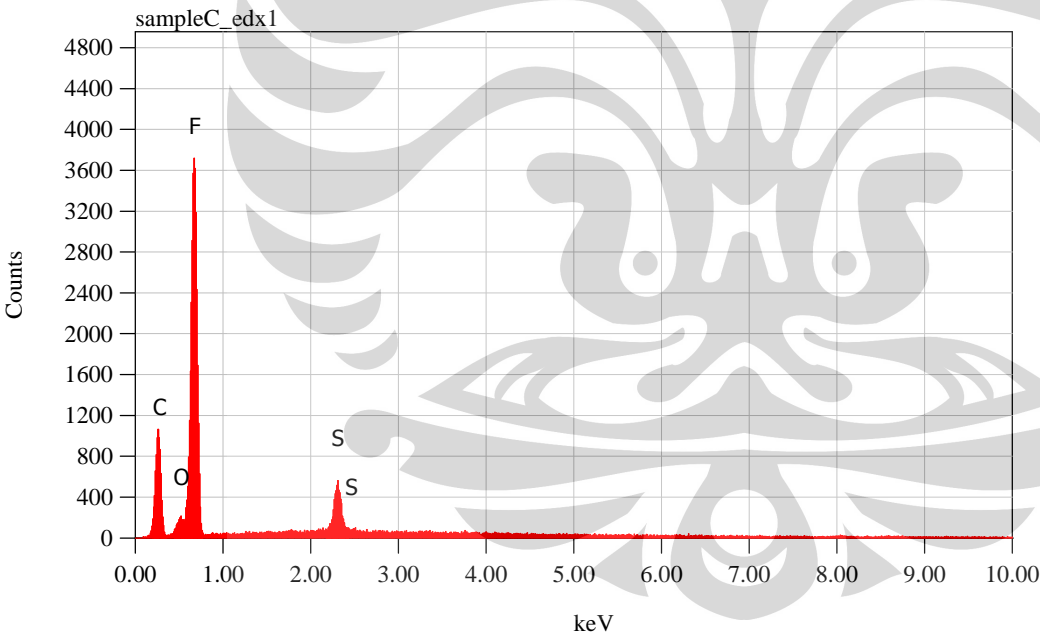
Element	(keV)	mass%	Error%	Mol%	Compound	mass%	Cation	K
C K	0.277	49.22	0.20	93.69	C	49.22	0.00	28.2681
O		8.84						

View000

1/1



Title : IMG2  
 -----  
 Instrument :  
 Volt : 20.00 kV



Acquisition Parameter  
 Instrument : 6390(LA)  
 Acc. Voltage : 20.0 kV  
 Probe Current: 1.00000 nA  
 PHA mode : T3  
 Real Time : 35.52 sec  
 Filter : 20.00

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis(Oxide)

Fitting Coefficient : 0.2552

Total Oxide : 24.0

Element	(keV)	mass%	Error%	Mol%	Compound	mass%	Cation	K
C K	0.277	36.38	0.15	50.38	C	36.38	0.00	29.9533
O		5.45						