



TESIS - TL142501

Pengaruh Material *Graphene* Oksida/X dan
Graphene/X (X=Au, Pd dan PdAu) sebagai
Elektrokatalis terhadap Unjuk Kerja *Direct*
Methanol Fuel Cell(DMFC)

DELLA DEWI RATNASARI
NRP. 2714201004

DOSEN PEMBIMBING
Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.
Dr. Eng. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc.

PROGRAM MAGISTER
BIDANG KEAHLIAN MATERIAL INOVATIF
JURUSAN TEKNIK MATERIAL DAN METALURGI
FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2016



THESIS - TL142501

The Effect of Graphene Oxide/X and
Graphene/X (X=Pd, Au and PdAu) Material as
Electrocatalyst on the Performance of Direct
Methanol Fuel Cell (DMFC)

DELLA DEWI RATNASARI
NRP. 2714201004

Advisor

Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.

Dr. Eng. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc.

MASTER PROGRAM
MATERIAL INOVATIF
MATERIAL & METALLURGYCAL ENGINEERING
FACULTY OF INDUSTRIAL TECHNOLOGY
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2016

**LEMBAR PENGESAHAN
TESIS**

**Tesis disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Teknik (M.T.)
Di
Institut Teknologi Sepuluh Nopember**

**Oleh :
Della Dewi Ratnasari
NRP. 2714201004**

**Tanggal Ujian : 21 Juli 2016
Periode Wisuda : Semester Genap 2015/2016**

Disetujui oleh :

1. **Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D**
NIP. 197701062003122001


(Pembimbing I)

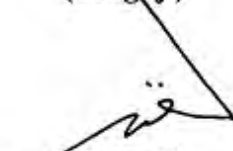
2. **Dr. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc**
NIP. 198012072005011004


(Pembimbing II)

3. **Dr. Sigit Tri Wicaksono, S.Si., M.Si**
NIP. 197801132002121003



(Penguji)

4. **Lukman Noerochim, S.T., M.Sc-Eng., Ph.D.**
NIP. 197713032003121001


(Penguji)



Direktur Program Pascasarjana,


Prof. Ir. Djauhar Manfaat, M.Sc., Ph.D.
NIP. 196012021987011001

(halaman ini sengaja dikosongkan)

**PENGARUH MATERIAL *GRAPHENE* OKSIDA/X DAN
GRAPHENE/X (X=Au, Pd dan PdAu) SEBAGAI
ELEKTROKATALIS TERHADAP UNJUK KERJA *DIRECT*
METHANOL FUEL CELL (DMFC)**

Nama Mahasiswa : Della Dewi Ratnasari
NRP : 2714201004
Pembimbing : Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D
Ko-Pembimbing : Dr. Eng. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc

ABSTRAK

Fuel cell adalah perangkat yang dapat mengubah energi kimia menjadi energi listrik. *Fuel cell* terdiri dari membran elektrolit, elektroda, katalis, pengumpul arus. Elektrokatalis merupakan bentuk spesifik dari katalis yang berfungsi pada permukaan elektrode atau mungkin pada elektrode itu sendiri. Pada umumnya elektrokatalis yang diaplikasikan pada DMFC adalah platina (Pt), namun Pt memiliki harga yang sangat mahal dan mudah teracun CO. Penelitian sebelumnya sudah mengembangkan *graphene* sebagai alternatif pengganti Pt, karena memiliki konduktivitas listrik yang cukup baik, luas permukaan spesifik yang tinggi dan modulus young yang tinggi. Namun karena tingginya kinerja Pt maka belum bisa tergantikan sepenuhnya oleh *graphene*. Sehingga penelitian sebelumnya tetap memadukan antara *graphene* dan Pt atau logam inert yang lain yaitu kobalt (Co), tembaga (Cu), paladium (Pd), iridium (Ir), dll. Maka penelitian ini melaporkan hasil eksperimen *graphene* oksida dan *graphene* yang disintesis dengan metode hummer yang dimodifikasi lalu dideposisikan pada *carbon cloth*, kemudian dilapisi dengan logam X (Au, Pd dan PdAu) menggunakan PVD dengan variasi waktu sputter 10, 15 dan 20 menit. Kemudian diuji menggunakan *scanning electron microscope* (SEM), *X-ray diffractometer* (XRD), dan *cyclic voltammetry* (CV). Dari hasil pengujian diketahui bahwa penambahan material GO dan G dapat meningkatkan daya simpan muatan elektrokatalis, dan logam X meningkatkan sifat elektrooksidasi terhadap metanol. Sputter logam Au memiliki nilai ECSA tertinggi 79,4 cm²/mg dan dengan nilai If/Ib 3,67 (sputter time 15 menit). Sputter logam Pd memiliki nilai ECSA tertinggi 147 cm²/mg dan nilai If/Ib tertinggi 11,06 (sputter time 15 menit). Sputter PdAu memiliki nilai ECSA tertinggi 45,4 cm²/mg dan If/Ib 5,6 (sputter time 20 menit). Sehingga logam Pd mempunyai sifat elektrooksidasi elektrokatalis terhadap metanol paling tinggi daripada logam Au & bimetal PdAu.

Kata kunci: *Cyclic voltammetry*, *DMFC*, *elektrokatalis*, *graphene oksida/X*, *graphene/X*

(halaman ini sengaja dikosongkan)

THE EFFECT OF GRAPHENE OXIDE/X AND GRAPHENE/X (X= Au, Pd AND PdAu) MATERIAL AS ELECTROCATALYST ON THE PERFORMANCE OF DIRECT METHANOL FUEL CELL (DMFC)

Student Name : Della Dewi Ratnasari
NRP : 2714201004
Supervisor : Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.
Co-Supervisor : Dr. Eng. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc

ABSTRACT

Fuel cell is a device that can convert chemical energy directly into electrical energy. Fuel cell have many parts, there are electrolyte membrane, electrode, catalyst, current collector. Electrocatalyst is specific model of catalyst which has function in electrode surface or in self electrode. Generally, electrocatalyst which applied in DMFC is platinum (Pt), but Pt is expensive and easy poisoned by carbon monoxide gas (CO). Previous studies had developed a graphene as an alternative to replace Pt because graphene had superior conductivity, high specific surface area and high modulus young. But because of the high performance of Pt, it could not be fully replaced by graphene. So that previous studies still combined graphene with Pt and other noble metals, such as cobalt (Co), cuprum (Cu), palladium (Pd), iridium (Ir), etc. So, in this paper investigated graphene oxide and graphene were synthesized by modified hummer method and deposited in carbon cloth, after that specimen are coated X (X=Au, Pd and PdAu) by PVD with 10, 15 and 20 minutes sputter time variation. Sample tested use scanning electron microscope (SEM), X-ray diffractometer (XRD) and cyclic voltammetry (CV). The analysis show graphene oxide and graphene material enhance charging capability for methanol oxidation. Highest Au sputter ECSA is 79,4 cm²/mg and I_f/I_b is 3,67 (sputter time 15 minutes). Highest Pd sputter ECSA is 147 cm²/mg and I_f/I_b is 11,06 (sputter time 15 minutes). Highest PdAu sputter ECSA is 45,4 cm²/mg and I_f/I_b is 5,6 (sputter time 20 minutes). So, Pd increase highest electrooxidation property of electrocatalyst for methanol than Au and PdAu metal.

Key Words : Cyclic voltammetry, DMFC, electrocatalyst, graphene oxide/X, graphene/X

(Halaman ini sengaja di kosongkan)

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
COVER.....	iii
LEMBAR PENGESAHAN	v
ABSTRAK.....	vii
ABSTRACT.....	ix
KATA PENGANTAR	xi
DAFTAR ISI.....	xiii
DAFTAR GAMBAR	xix
DAFTAR TABEL.....	xxv
BAB 1 PENDAHULUAN	1
1.1 Latar belakang.....	1
1.2 Perumusan Masalah	3
1.3 Batasan Masalah	3
1.4 Tujuan Penelitian	4
1.5 Manfaat Penelitian	4
BAB 2 KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI	5
2.1 Definisi <i>Fuel cell</i>	5
2.2 Perkembangan <i>Fuel cell</i>	6
2.3 Klasifikasi <i>Fuel cell</i>	7
2.3.1 <i>Phosporic Acid Fuel cell</i> (PAFC)	7
2.3.2 <i>Solid Oxide Fuel cell</i> (SOFC).....	8
2.3.3 <i>Molten Carbonate Fuel cell</i> (MCFC)	10
2.3.4 <i>Alkaline Fuel cell</i> (AFC).....	12
2.3.5 <i>Polymer Electrolyte Membrane Fuel cell</i> (PEMFC)	13
2.4 <i>Direct Methanol Fuel cell</i>	14
2.4.1. Pendahuluan DMFC	14
2.4.2. Prinsip DMFC.....	17
2.4.3. <i>Material advance</i>	20
2.5 Sistem <i>Fuel cell</i>	22

2.6 Aplikasi Sistem <i>Fuel cell</i>	24
2.6.1 Penerapan <i>Fuel cell</i> Sebagai Pembangkit Listrik Skala Kecil	25
2.6.2 Penerapan <i>Fuel cell</i> Di Sektor Transportasi	27
2.7 Katalis	28
2.8 Grafit.....	30
2.9 <i>Graphene</i> Oksida.....	30
2.10 <i>Graphene</i>	31
2.10.1 Pendahuluan <i>Graphene</i>	31
2.10.2 Sifat Elektronik Dasar Dari Unsur Berbasis <i>Graphene</i>	33
2.11 Material X (X=Au, Pd dan PdAu)	37
2.12 <i>Sputtering</i>	37
2.13 Sifat elektrokimia pada elektrokatalis	40
2.14 Penelitian sebelumnya	41
2.14.1 Paladium sebagai katalis yang di dukung oleh <i>graphene</i> oksida dan <i>graphene</i>	41
2.14.2 Studi katalis Pt pada <i>graphene</i> dan aplikasinya untuk <i>fuel cell</i> ..	42
2.14.3 Katalis bimetal dan trimetal Pt-Sn/C, Pt-Ir/C, Pt-Ir-Sn/C untuk elektrooksidasi etanol pada Direct <i>Methanol Fuel cell</i> (DMFC) ..	43
2.14.4 Struktur nano katalis Pt dan Pt-Sn disupport karbon <i>nanotube</i> yang teroksidasi untuk elektrooksidasi etanol dan etilen glikol ..	44
2.14.5 Efek penambahan renium untuk katalis anoda berbasis Pt pada elektrooksidasi etanol pada direct ethanol <i>fuel cell</i> (DMFC)	45
2.14.6 <i>Graphene</i> Nanoribbon Sebagai Material Support Terbaru Untuk Elektrokatalis <i>Fuel cell</i> Dengan Performa Tinggi.....	46
2.14.7 Kinerja Sintesis Dan Elektrokatalitik Oksidasi Alkohol Pada Nanopartikel Bimetal Pd- Co Pendukung <i>Graphene</i>	47
2.14.8 Nanopartikel Pd yang disupport pada <i>Graphene</i> Aerogel Tiga Dimensi sebagai Katalis dengan Efisiensi Tinggi untuk Elektrooksidasi Metanol.....	48
2.14.9 Sintesis Komposit Pd/C dari PdCl ₂ dan β-CD sebagai Katalis pada Oksidasi Metanol	49

2.14.10	Penggabungan <i>Hybrid</i> secara erat antara Grafitik Karbon Nitrida <i>Nanoflakelets</i> dengan <i>Graphene</i> Oksida yang direduksi untuk mensupport Pd Nanopartikel : Nanokatalis Stabil dengan Aktivitas Katalitik yang Tinggi terhadap Asam Formiat dan Elektrooksidasi Metanol	49
2.14.11	Elektrooksidasi Metanol pada Katalis SnO ₂ Disupport oleh Pd/MWCNTs pada Larutan Alkalin	50
2.14.12	Deposisi Elektrokimia <i>single step</i> pada Nano Komposit Au- <i>Graphene</i> yang Berperforma Tinggi untuk Mendeteksi Glukosa Non Enzimatik	50
BAB 3 METODE PENELITIAN		53
3.1	Bahan	53
3.2	Alat.....	54
3.3	Diagram Alir Penelitian	55
3.3.1	Diagram Alir Pembentukan Grafit Oksida	55
3.3.2	Pembentukan <i>graphene</i> oksida dari grafit oksida.....	56
3.3.3	Pembentukan <i>Graphene</i> dari Grafit Oksida.....	57
3.3.4	Sintesis Elektrokatalis <i>Graphene</i> Oksida/X & <i>Graphene</i> /X	58
3.4	Prosedur Penelitian	59
3.4.1	Sintesis Grafit Oksida Dari Grafit.....	59
3.4.2	Sintesis <i>Graphene</i> Oksida Dari Grafit Oksida.....	60
3.4.3	Sintesis <i>Graphene</i> Dari Grafit Oksida	61
3.4.4	Sintesis Elektrokatalis <i>Graphene</i> Oksida/X dan <i>Graphene</i> /X.....	60
3.4.5	Pengujian Karakterisasi dan Elektrokimia.....	64
3.4.5.1	<i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM)	64
3.4.5.2	<i>X-Ray Diffraction</i> (XRD).....	65
3.4.5.3	Pengukuran <i>Cyclic Voltammetry</i> (CV)	66
3.4.5.3.1	Pembuatan Elektrode Kerja	66
3.4.5.3.2	Pembuatan Larutan KOH 1 M	67
3.4.5.3.3	Pembuatan Elektrolit KOH-Metanol 1 M.....	68
3.5	Rancangan Penelitian.....	68

3.6 Jadwal Kegiatan.....	70
BAB 4 ANALISA DATA & PEMBAHASAN.....	71
4.1 Pengujian XRD.....	71
4.1.1 Pengujian XRD material hasil proses	71
4.1.2 Pengujian XRD elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Au dan <i>graphene</i> /Au.....	74
4.1.3 Pengujian XRD elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Pd dan <i>graphene</i> /Pd.....	76
4.1.4 Pengujian XRD elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/PdAu dan <i>graphene</i> /PdAu.....	78
4.2 Pengujian SEM.....	80
4.2.1 Pengujian material hasil sintesis	80
4.2.2 Pengujian SEM elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Au dan <i>graphene</i> /Au.....	83
4.2.2.1 Pengujian SEM-EDAX.....	85
4.2.3 Pengujian SEM elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Pd dan <i>graphene</i> /Pd.....	87
4.2.4 Pengujian SEM elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/PdAu dan <i>graphene</i> /PdAu.....	88
4.3 Pengujian CV.....	91
4.3.1 Pengujian CV material hasil sintesis.....	91
4.3.2 Pengujian CV elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Au dan <i>graphene</i> /Au	93
4.3.3 Pengujian CV elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/Pd dan <i>graphene</i> /Pd.....	98
4.3.4 Pengujian CV elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/PdAu dan <i>graphene</i> /PdAu	103
4.4 Ringkasan hasil pengujian.....	109
BAB 5 KESIMPULAN & SARAN.....	113
5.1 Kesimpulan.....	113
5.2 Saran	113

DAFTAR PUSTAKA	115
LAMPIRAN.....	119

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR TABEL

2.1 Jenis <i>fuel cell</i>	21
2.2 Perbedaan kombinasi katalis bimetal dan trimetal yang disiapkan dengan komposisi metal yang berbeda	44
2.3 Perbedaan kombinasi katalis bimetal dan trimetal yang disiapkan dengan komposisi metal yang berbeda	46
3.1 Rancangan penelitian	68
3.2 Jadwal kegiatan	70
4.1 Data hasil uji SEM-EDAX elektrokatalis dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit.....	86
4.2 Data hasil perhitungan ECSA untuk elektrokatalis dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit.....	95
4.3 Data hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit elektrolit KOH-metanol 1 M.....	96
4.4 Data hasil uji CV dengan KOH-metanol 1 M pada elektrokatalis CC/G dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit.....	97
4.5 Data ECSA elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah disputer Pd dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit elektrolit KOH 1 M	99
4.6 Hasil uji CV dengan elektrolit KOH-metanol 1 M CC/GO dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit.....	101
4.7 Hasil uji CV dengan elektrolit KOH-metanol 1 M CC/G dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit.....	102
4.8 Data hasil perhitungan ECSA sputter PdAu	106
4.9 Hasil uji CV material CC/gO dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit elektrolit KOH-metanol 1 M.....	108
4.10 Data If/Ib elektrokatalis CC/G sputter PdAu 10, 15 dan 20 menit elektrolit KOH-metanol 1 M.....	108
4.11 Data semua pengujian CV	109

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR GAMBAR

2.1 <i>Fuel cell</i>	6
2.2 PAFC.....	8
2.3 (a)Skematik SOFC (b)Prinsip kerja SOFC	9
2.4 <i>Molten Carbonate Fuel Cell</i>	10
2.5 Skematik reaksi <i>Molten Carbonate Fuel Cell</i>	11
2.6 <i>Alkaline Fuel Cell</i>	12
2.7 <i>Polymer Electrolyte Membrane (PEM)</i> secara umum	13
2.8 <i>Fuel cell stack Direct Methanol Fuel Cell</i>	14
2.9 Skematik <i>Direct Methanol Fuel Cell</i> pasif	15
2.10 <i>Direct Methanol Fuel cell (DMFC)</i>	16
2.11 Fenomena <i>methanol crossover</i>	16
2.12 <i>Internal short circuit</i> yang dibuat oleh <i>crossover</i>	17
2.13 DMFC yang menggunakan nafion.....	17
2.14 Kurva arus/potensial terhadap anoda dan katoda.....	19
2.15 Elektrosorpsi permukaan metanol pada elektrolit asam sulfat.....	19
2.16 <i>Fuel cell stack</i>	22
2.17 Skematik <i>fuel cell</i> individu	23
2.18 <i>Steam turbine fuel cell</i>	26
2.19 Prinsip kerja mobil listrik <i>fuel cell</i>	27
2.20 Desain <i>fuel cell car</i> oleh Ford.....	28
2.21 Katalis	28
2.22 Elektrokatalis	29
2.23 Grafit	30
2.24 Gambar nanostruktur <i>graphene</i> oksida.....	31
2.25 Nanostruktur <i>graphene</i>	33
2.26 (a) kisi sarang madu dari <i>graphene</i> , (b) dispersi energi pita, (c) Zona Brillouin Pertama.....	34
2.27 Struktur <i>graphene</i>	36
2.28 Skema proses sputter	37

2.29 Sputtering , <i>layer by layer</i>	39
2.30 Katalis Pt disupport oleh <i>graphene</i>	43
2.31 Rute sintesis untuk hibrid Pt/GNR.....	47
2.32 Prosedur sintesis Pd-Co /RGO	48
3.1 Diagram alir sintesis grafit oksida	55
3.2 Diagram alir sistesis <i>graphene</i> oksida	56
3.3 Diagram alir sintesis <i>graphene</i>	57
3.4 Diagram alir sintesis elektrokatalis <i>graphene</i> oksida/X dan <i>graphene/X</i>	58
3.5 Proses sintesis grafit oksida	59
3.6 Proses pencucian dan pengeringan hingga terbentuk lembaran grafit oksida.....	60
3.7 Proses sintesis <i>graphene</i> oksida dan <i>graphene</i> dari grafit oksida	61
3.8 Alat yang digunakan pada proses sputter Au di BATAN	62
3.9 Spesimen carbon cloth.....	62
3.10 Spesimen <i>carbon cloth/graphene</i> oksida setelah di sputter Au dengan variasi waktu (a)10 (b)15 (c)20 menit, ukuran sampel 1 x 1 cm.....	62
3.11 Spesimen <i>carbon cloth/graphene</i> setelah di sputter Au dengan variasi waktu (a)10 (b)15 (c)20 menit, ukuran sampel 1 x 1 cm.....	62
3.12 Spesimen <i>graphene</i> oksida/Pd dan <i>graphene</i> /Pd dengan variasi sputter time 10,15 dan 20 menit 1 x1 cm	63
3.13 Spesimen <i>graphene</i> oksida/PdAu dan <i>graphene</i> /PdAu dengan variasi sputter time 10,15 dan 20 menit 1 x1 cm	63
3.14 Instrumen SEM	64
3.15 Instrumen XRD PANalytical	65
3.16 Elektroda kerja	66
3.17 <i>Bubling</i> larutan KOH dengan gas nitrogen	67
4.1 Hasil XRD grafit.....	71
4.2 Hasil uji XRD grafit oksida, <i>graphene</i> oksida dan <i>graphene</i>	72
4.3 Hasil uji XRD <i>carbon cloth</i> , <i>carbon cloth/graphene</i> oksida dan carbon <i>cloth/graphene</i>	73

4.4 Hasil pengujian XRD CC/GO yang telah disputer Au dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	74
4.5 Hasil pengujian XRD CC/G yang telah disputer Au dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	75
4.6 Hasil pengujian XRD CC/GO yang telah disputer Pd dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	76
4.7 Hasil pengujian XRD CC/G yang telah disputer Pd dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	77
4.8 Hasil pengujian XRD CC/GO yang telah disputer PdAu dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	78
4.9 Hasil pengujian XRD CC/G yang telah disputer PdAu dengan variasi sputter time 10, 15 dan 20 menit.....	79
4.10 Hasil SEM grafit perbesaran (A)500x (B)10000x.....	81
4.11 Hasil SEM (A)grafit oksida (B) <i>graphene</i> oksida (C) <i>graphene</i> Perbesaran 500 x	81
4.12 Hasil SEM (A)grafit oksida (B) <i>graphene</i> oksida (C) <i>graphene</i> Perbesaran 10000x	82
4.13 Hasil SEM (A) <i>carbon cloth</i> (B)CC/GO (C)CC/G perbesaran 500 x	82
4.14 Hasil SEM (A) <i>carbon cloth</i> (B)CC/GO (C)CC/G perbesaran 10000x .	83
4.15 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time Au (A)10 (B)15 (C)20 Menit perbesaran 500x.....	83
4.16 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time Au (A)10 (B)15 (C)20 Menit perbesaran 10000x.....	83
4.17 Hasil SEM CC/G variasi sputter time Au (A)10 (B)15 (C)20 Menit perbesaran 500x.....	84
4.18 Hasil SEM CC/G variasi waktu sputter Au (A)10 (B)15 (C)20 Menit perbesaran 10000x.....	84
4.19 Uji SEM-EDAX CC/GO dengan variasi sputter time Au (A)10 (B)15 (C)20 menit.....	85
4.20 Uji SEM-EDAX CC/G dengan variasi sputter time Au (A)10 (B)15 (C)20 menit.....	86

4.21 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x.....	87
4.22 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x.....	87
4.23 Hasil SEM CC/G variasi sputter time Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x.....	88
4.24 Hasil SEM CC/G variasi sputter time Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x.....	88
4.25 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x.....	89
4.26 Hasil SEM CC/GO variasi sputter time PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x.....	89
4.27 Hasil SEM CC/G variasi sputter time PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x.....	90
4.28 Hasil SEM CC/G variasi sputter time PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x.....	90
4.29 Hasil uji CV material CC, CC/GO dan CC/G dengan elektrolit KOH 1 M.....	91
4.30 Hasil uji CV material CC, CC/GO dan CC/G dengan elektrolit KOH- metanol 1 M.....	92
4.31 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M.....	93
4.32 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M.....	93
4.33 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M.....	96
4.34 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time Au 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M.....	97
4.35 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M.....	98

4.36 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M	99
4.37 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M	101
4.38 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time Pd 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M	102
4.39 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M	104
4.40 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M	104
4.41 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M	105
4.42 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH 1 M	105
4.43 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M	107
4.44 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M	107
4.45 Hasil uji CV CC/G dengan variasi sputter time PdAu 10, 15 dan 20 menit dengan elektrolit KOH-metanol 1 M	108

(halaman ini sengaja dikosongkan)

Perubahan Struktur Mikro & Fase Material Sensor Gas TiO₂” penulis memperoleh gelar sarjana. Kemudian pada tahun 2014, penulis bekerja di perusahaan swasta yaitu PT. Honda prospect Motor sebagai staf departemen *Quality Engineering* selama 5 bulan. Kemudian penulis melanjutkan studi S2 di jurusan Teknik Material dan Metalurgi ITS. Selain itu penulis juga aktif berorganisasi di FKMM S2 Teknik Material dan Metalurgi, menjabat sebagai sekertaris.

Untuk memperoleh gelar master penulis telah menyelesaikan tugas akhir di bidang material inovasi dengan judul “Analisis Pengaruh Material *Graphene* Oksida/X dan *Graphene/X* (X=Au, Pd dan PdAu) sebagai Elektrokatalis terhadap Unjuk Kerja *Direct Methanol Fuel Cell* (DMFC)”.

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Tantangan yang dihadapi oleh manusia pada saat ini adalah masalah persediaan energi. Saat ini, bahan bakar fosil merupakan sumber energi yang paling banyak digunakan untuk memenuhi kebutuhan energi, sedangkan bahan bakar fosil tidak dapat diperbaharui dan dalam jumlah terbatas, sehingga terjadi krisis energi (Doney dan Schimel, 2007).

Salah satu perangkat energi alternatif yang menjadi harapan besar manusia adalah *fuel cell*. *Fuel cell* adalah perangkat yang dapat mengubah energi kimia menjadi energi listrik secara langsung dan oleh karena itu memiliki efisiensi konversi energi yang lebih tinggi (EG & G Technical Service, Inc). *Direct methanol fuel cell* (DMFC) mereaksikan metanol (CH_3OH) dengan air (H_2O) sehingga menghasilkan karbon dioksida (CO_2), ion H^+ , dan elektron (e^-). Ion H^+ inilah yang bereaksi dengan Oksigen (O_2) dari udara dan membentuk H_2O . Sehingga hasil akhirnya adalah H_2O , CO_2 dan elektron sebagai listrik (Hackquard, 2005).

Fuel cell terdiri atas beberapa bagian, antara lain membran elektrolit, elektroda, katalis dan pengumpul arus (Hasan, 2007). Bagian yang paling krusial dari sistem DMFC adalah material elektroda yang terdiri dari katalis pendukung/elektrokatalis (Zhang, 2014). Elektrokatalis adalah katalis yang berpartisipasi pada reaksi elektrokimia. Material katalis memodifikasi dan meningkatkan kecepatan reaksi kimia tanpa ikut bereaksi. Elektrokatalis adalah bentuk spesifik dari katalis yang berfungsi pada permukaan elektroda atau pada elektroda itu sendiri (Kunze, 2009).

Namun pada umumnya *fuel cell* mengaplikasikan membran nafion yang katalisnya adalah platina (Pt). Pt memiliki harga yang mahal dan mudah teracuni oleh gas karbon monoksida (CO). Sebaliknya, katalis Au memiliki aktivitas katalitik yang sangat baik untuk oksidasi metanol. Selain itu aktivitas Au pada media alkalin relatif tinggi, dan tidak ada jenis racun yang terbentuk selama

elektro oksidasi metanol. Oleh karena itu banyak penelitian yang relevan mengenai katalis Au sebagai elektrokatalis pada DMFC (Yan dkk, 2011).

Diantara material yang lain, Pd tidak hanya lebih murah dari pada Pt, tapi juga memiliki aktivitas katalitik yang tinggi. Banyak upaya yang telah dilakukan untuk mengarahkan paduan nanopartikel berbasis Pd untuk *fuel cell* (Yang dkk, 2016). Dengan kombinasi nanopartikel Pd dan *graphene sheet*, kinerja elektrokatalitik katalis Pd telah meningkatkan tingginya masa dan perpindahan muatan selama proses reaksi elektrokatalitik (Liu dkk, 2015).

Namun, ketersediaan Au yang terbatas di alam dan mahalnnya harga Au menyebabkan Au kurang efisien sebagai katalis komersial. Karena itu, Au nanostruktur yang disupport oleh material karbon dapat menjadi cara yang efektif untuk mengurangi Au *loading* dan meningkatkan kinerja elektrokatalitik (Shu dkk, 2015). Kelemahan dari Au nanopori adalah kecenderungan untuk mengalami proses *coarsening*, sehingga mengakibatkan penurunan kinerjanya. Dengan menambahkan elemen *doping* dalam jumlah kecil misalnya Pd, memungkinkan untuk meningkatkan stabilitas nanopori dan kinerja elektrokatalitik (Paschalidou dkk, 2016).

Banyak studi yang berhubungan dengan katalis yang disupport oleh *graphene* dan aplikasinya pada *fuel cell* telah dipublikasikan (Hsieh dkk, 2013). Selain itu (jing-jing dkk, 2014) mengembangkan paduan bimetalik Pd-Au dispersi tunggal yang disupport oleh *graphene* oksida yang telah direduksi dengan peningkatan aktivitas elektrokatalitik terhadap reaksi reduksi oksigen. (Liu dkk, 2015) juga mengembangkan Pd nanopartikel yang disupport oleh *graphene* aerogel 3 dimensi sebagai katalis dengan efisien tinggi untuk elektrokatalitik metanol.

Graphene oksida merupakan derivasi dari *graphene* yang memiliki konduktivitas listrik sangat tinggi (Bayer dkk, 2014). *Graphene*, sebuah lapisan tipis atom tunggal dari pengaturan sp^2 - yang di ikat oleh atom karbon yang secara intensif telah dipelajari pada bidang fisika, kimia dan material dikarenakan luas permukannya yang tinggi ($\sim 2600 \text{ m}^2/\text{g}$), konduktivitas listrik yang tinggi (10^5 - 10^6 S/m) dan aktivitas elektrokatalitik yang tinggi (Li dkk, 2014) dan memiliki struktur yang unik yaitu konduktivitas termal, mobilitas intrinsik, modulus young yang masing-masing memiliki nilai yang sangat tinggi (Choi, 2012).

Oleh karena itu penelitian ini mencoba mengkombinasikan *graphene* oksida/X dan *graphene*/X (X=Au, Pd dan PdAu) sebagai elektrokatalis DMFC. *Graphene* oksida dan *graphene* disintesis menggunakan metode Hummer yang telah di modifikasi. Au, Pd dan PdAu dideposisikan dengan metode *sputtering* menggunakan instrument *Physical Vapour Deposition* (PVD) dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit, menggunakan *carbon cloth* sebagai substrat. Karakterisasi material yang dilakukan menggunakan SEM, XRD, sedangkan pengujian elektrokimia yang dilakukan adalah *cyclic voltammetry* (CV). Penelitian ini diaplikasikan untuk *Direct Methanol Fuel cell* (DMFC) suatu jenis *fuel cell* yang menggunakan bahan bakar metanol.

1.2 Perumusan Masalah

Perumusan masalah dalam penelitian ini adalah :

1. Bagaimana pengaruh variasi *sputter time* pada proses *sputter* material Au, Pd dan PdAu terhadap peningkatan aktivitas elektrokatalitik DMFC.
2. Bagaimana pengaruh *graphene* oksida/X dan *graphene*/X (X= Au, Pd dan PdAu) terhadap peningkatan aktivitas elektrokatalitik DMFC.

1.3 Batasan Masalah

Batasan masalah dalam penelitian ini adalah:

1. Fluktuasi temperatur *magnetic stirrer* diabaikan.
2. Pengotor pada bahan baku grafit diabaikan.
3. Pengotor pada Au, Pd dan PdAu diabaikan.
4. Temperatur, tekanan, dan kelembapan udara dianggap konstan.
5. Fluktuasi tekanan dan temperatur PVD diabaikan
6. Pengotor pada elektrolit diabaikan
7. Fluktuasi arus dan tegangan pada instrument CV diabaikan
8. Ukuran elektroda dianggap homogen
9. Pengotor pada elektroda diabaikan.

1.4 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah

1. Menganalisis pengaruh variasi *sputter time* material Au, Pd dan PdAu terhadap peningkatan aktivitas elektrokatalitik DMFC.
2. Menganalisis pengaruh *graphene* oksida/X dan *graphene*/X (X=Au, Pd dan PdAu) terhadap peningkatan aktivitas elektrokatalitik DMFC.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat yang diperoleh dari penelitian ini adalah alternatif elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X (X=Au, Pd dan PdAu) pada DMFC yang diharapkan dapat menggantikan elektrokatalis platina yang sangat mahal dan mudah teracuni oleh gas CO. Selain itu, dengan turunnya harga produksi elektrokatalis diharapkan, DMFC dapat menjadi alternatif energi terbarukan yang sedang menjadi isu hangat saat ini.

BAB 2

KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

2.1 Definisi *Fuel cell*

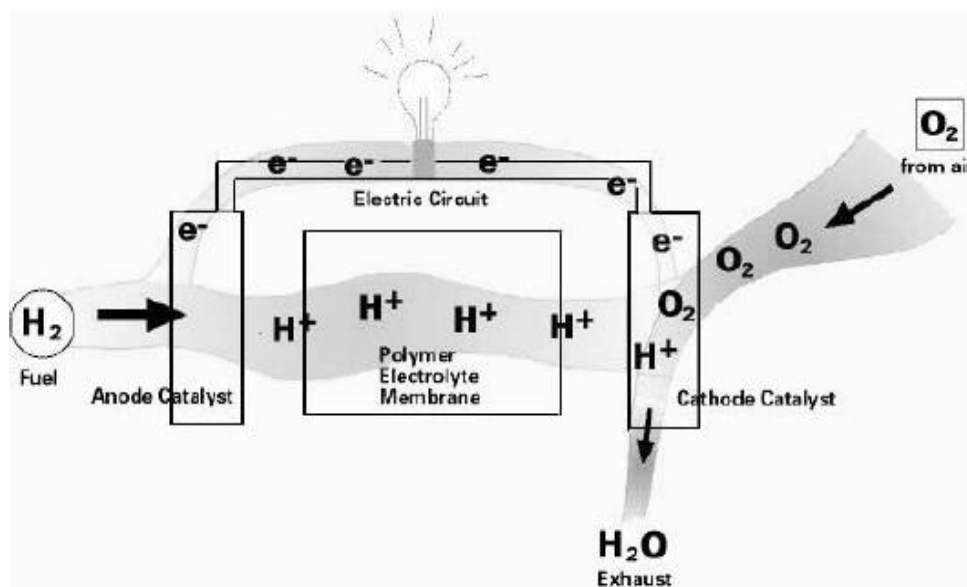
Fuel cell adalah perangkat yang dapat mengubah energi kimia menjadi energi listrik secara langsung dan karenanya memiliki efisiensi konversi energi yang lebih tinggi. Selain efisiensi konversi energi yang lebih tinggi, *fuel cell* juga memiliki keuntungan lain yaitu, produk kimia dalam proses reaksinya hanya air. Hal ini menegaskan kebutuhan untuk menjaga lingkungan melalui energi ramah lingkungan. Oleh karena itu, *fuel cell* dianggap sebagai teknik keempat untuk menghasilkan listrik setelah termo-power, tenaga hidrolik dan pembangkit listrik tenaga nuklir (Hsieh dkk, 2013).

Fuel cell adalah perangkat yang dapat mengubah energi kimia pada bahan bakar menjadi energi listrik secara langsung yang menjanjikan. *Fuel cell* merupakan generasi pembangkit dengan efisiensi tinggi dan dampak terhadap lingkungan yang rendah, karena *fuel cell* tidak menerapkan langkah pembakaran dan jenis kerja mekanik yang lain seperti pada generasi pembangkit konvensional yang saat ini sangat dihindari. Selain itu, *fuel cell* juga tidak dibatasi oleh hukum termodinamika mesin bakar seperti efisiensi karnot. Karena *fuel cell* tidak menggunakan proses pembakaran, sehingga *fuel cell* menghasilkan tenaga dengan polutan minimal (EG&G Technical Services, Inc, 2004).

Namun, tidak seperti reduktan dan oksidan baterai, *fuel cell* menunjukkan kebalikan dari proses elektrolisa. Pada kenyataannya, beberapa *fuel cell* dapat beroperasi sebagai elektroliser, menghasilkan sebuah *fuel cell* reversibel yang dapat digunakan untuk penyimpan energi (EG&G Technical Services, Inc, 2004).

Fuel cell (pada prinsipnya) dapat memproses berbagai macam bahan bakar dan oksidan. Sebagian besar masyarakat saat ini tertarik pada *fuel cell* yang pada umumnya menggunakan bahan bakar (atau derivasi) atau hidrogen sebagai reduktan dan udara sekitar sebagai oksidan. Contoh prinsip kerja *fuel cell* yang menggunakan bahan bakar hidrogen (H_2) dan oksidan (O_2), yaitu gas dipecah menjadi H^+ dan e^- di anoda. Lalu H^+ berikatan dengan O_2 di katoda menghasilkan

output H_2O sedangkan e^- dialirkan sebagai produksi arus listrik. Salah satu gambar *fuel cell* ditunjukkan pada Gambar 2.1 (EG&G Tehnical Services, Inc, 2004).



Gambar 2.1 *Fuel cell* (Rayment dan Sherwin, 2003)

2.2 Perkembangan *Fuel cell*

Perkembangan teknologi *fuel cell* di negara-negara industri maju seperti Amerika dan Eropa akhir-akhir ini semakin terpacu dengan semakin digalakkannya swastanisasi pembangkit listrik tipe desentralisasi. Hal ini sejalan pula dengan kesadaran cinta lingkungan sesuai dengan agenda 21, Earth Summit di Rio De Janeiro, Brazil, 2001.

Teknologi *fuel cell* menjanjikan pembangkit listrik yang bebas polusi udara dan limbah beradiasi. Pada awalnya, *fuel cell* diaplikasikan pada teknologi ruang angkasa (Stasiun Ruang Angkasa). Lambat laun teknologi ini mampu bersaing karena harga dan kerapatan energi yang dihasilkannya mampu bersaing dengan pembangkit listrik BBM ataupun nuklir sekalipun. Dimana hal ini amat sukar dicapai oleh tipe energi terbarukan yang lain.

Teknologi *fuel cell* pertama kali ditemukan oleh Sir William Robert Grove pada tahun 1893, dimana ia mendemonstrasikan pemecahan uap menjadi hidrogen dan oksigen dengan pemanasan katalis seperti platina. Pada masa sekarang, proses ini dinamakan teknologi *reformer*. Hal yang agak mengejutkan adalah bahwa

penemu teknologi *fuel cell* (Sir William) adalah seorang sarjana hukum, akan tetapi nasib mengubahnya menjadi seorang ahli fisika setelah ia jatuh sakit dan menjadi professor fisika di sebuah institusi di London antara tahun 1840 – 1847. Kombinasi kedua disiplin ilmu itu pula yang menyebabkan ia terlibat pada penyusunan Hukum Patent di dunia komersial. Perkembangan teknologi *fuel cell* baru terasa setelah perkembangan teknologi material semakin pesat. Perusahaan yang sukses dalam pengembangan aplikasi ini misalnya, Pratt & Whitney yang telah berhasil mengaplikasikannya untuk misi penerbangan antariksa Gemini IV dan suksesnya pendaratan Apolo di bulan.

Aplikasi teknologi *fuel cell* yang paling mutakhir adalah digunakannya 12 kW *fuel cell* alkalin di pesawat ulang-alik milik NASA. Pada *fuel cell* ini, hidrogen dan oksigen murni digunakan untuk proses konversi listrik. Sejak tahun 1970, Departemen Energi Amerika telah melakukan riset tipe *Phosphoric Acid Fuel cell* (PAFC) untuk pembangkit listrik dan sekarang telah memasuki tahap komersialisasi. Sedangkan di Eropa, perkembangan teknologi *fuel cell* didukung oleh negara Uni Masyarakat Eropa dan berbagai pihak swasta. Demikian pula di Jepang, pengembangan teknologi *fuel cell* ini didukung oleh berbagai macam organisasi pemerintah maupun swasta (Hasan, 2007).

2.3 Klasifikasi *Fuel cell*

Berdasarkan elektrolitnya, secara umum *fuel cell* dapat diklasifikasikan menjadi 4 tipe (jenis), yaitu :

- a. *Phosphoric Acid Fuel cell* (PAFC)
- b. *Molten Carbonate Fuel cell* (MCFC)
- c. *Solid Oxide Fuel cell* (SOFC)
- d. *Solid Polymer Electrolyte Fuel cell* (SPEFC) (Hasan, 2007)

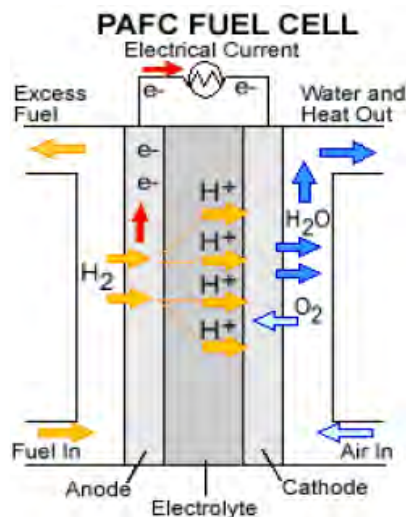
Sedangkan jenis-jenis *fuel cell* pada umumnya dijabarkan sebagai berikut :

2.3.1 *Phosphoric Acid Fuel cell* (PAFC)

PAFC yang ditunjukkan pada Gambar 2.2, hampir sama dengan *Proton Exchange Membrane Fuel cell* (PEMFC). PAFC menggunakan elektrolit *proton-conducting*. Reaksi kimia menggunakan partikel elektrokatalis yang didispersikan

dengan baik menggunakan karbon hitam. Material elektroda pada umumnya adalah platina. Asam anorganik dari asam fosfor digunakan sebagai elektrolit, oleh karena itu diberi nama *phosphoric acid fuel cell*. Elektrolit ini akan mengkonduksikan proton. PAFC bekerja pada temperatur $\pm 180-200\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Rayment dan Sherwin, 2003).

PAFC sebagai pembangkit tenaga listrik, status teknologinya telah mencapai tahap semi komersial terutama di Jepang, Eropa dan Amerika, dengan kapasitas $\pm 200\text{ kW}$. Beberapa kendala yang masih dihadapi dalam komersialisasi adalah ketahanan *cell stack* dan biaya perawatan yang tinggi (Hasan, 2007).



Gambar 2.2 *Phosphoric Acid Fuel cell* (PAFC) (Rayment dan Sherwin, 2003)

2.3.2 *Solid Oxide Fuel cell* (SOFC)

SOFC memiliki potensi menjadi sistem yang paling efektif dan biaya yang paling efisien untuk konversi langsung dari berbagai jenis bahan bakar menjadi listrik. Kinerja dan ketahanan dari SOFC tergantung pada mikrostruktur dan morfologi komponen sel (Zuo dkk, 2012).



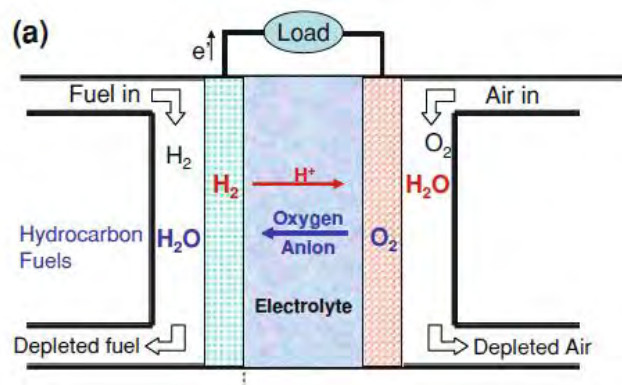
Reaksi keseluruhan :

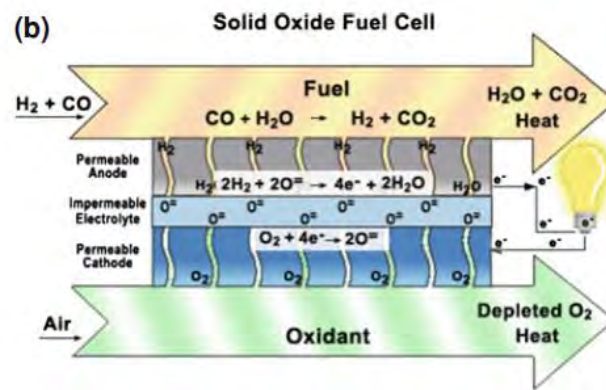


SOFC diakui sebagai alternatif energi terbarukan karena propertinya yang menarik. SOFC merupakan bagian dari kategori yang lebih luas dari *fuel cell* keramik, yang menarik karena komponennya adalah *solid state* (zat padat). *Fuel cell* jenis ini tidak seperti MCFC temperatur tinggi karena memiliki *solid state electrode*, seperti anoda, katoda dan sel penghubung yang padat.

SOFC beroperasi hingga temperatur 1000° C, namun karena tingginya temperatur kerja maka tidak mempersyaratkan adanya logam mulia untuk anoda dan katodanya, contoh elektroda yang digunakan adalah keramik nikel dan lantanum manganit. Karena SOFC beroperasi pada temperatur tinggi maka harus menggunakan H₂ dan CO yang murni. Pada umumnya gas metana, diesel, minyak tanah dan batubara dapat diaplikasikan pada SOFC sebagai bahan bakar, karena elektrodanya tidak mudah teracuni.

Untuk jenis SOFC seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.3, status teknologinya baru pada tahap percontohan dengan kapasitas 1 kW sampai dengan 25 kW seperti yang dilakukan oleh NEDO Jepang, *Enireche Italy*, *Westinghouse USA*. Kendala yang muncul dalam percontohan tersebut adalah *cell material sintering* dan densitas tenaga yang rendah (Hasan, 2007).





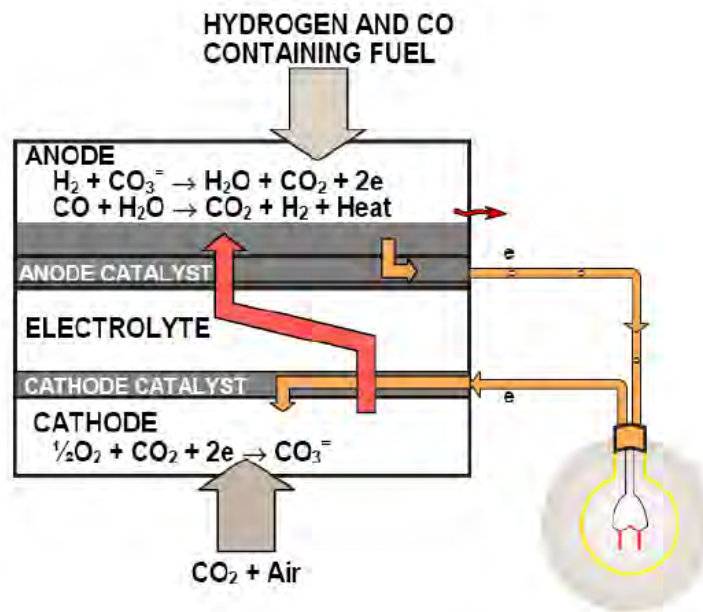
Gambar 2.3 (a)Skematik (b) Prinsip kerja *Solid Oxide Fuel cell* (SOFC)
(Zuo dkk, 2012)

SOFC dapat dikembangkan untuk sistem hibrida dengan pembakaran hidrogen. Masalah yang timbul adalah material elektrokatalis, sistem hibrida, dan penyimpanan hidrogen (Hasan, 2007).

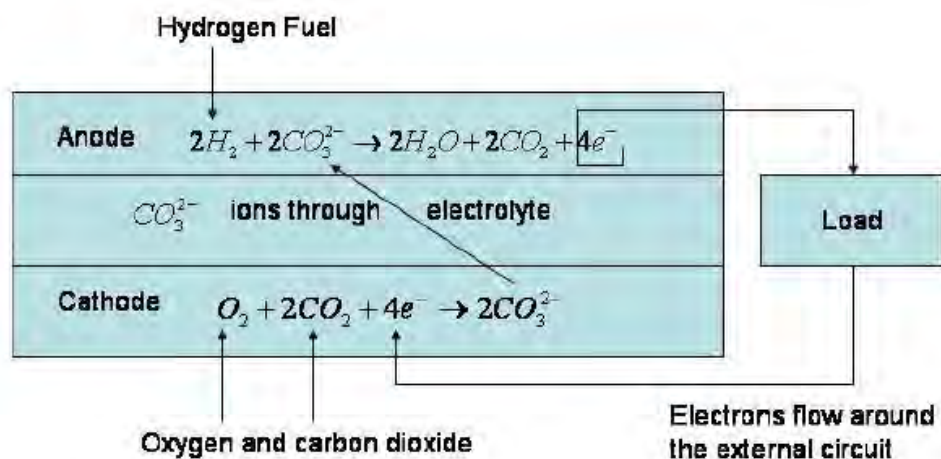
2.3.3 Molten Carbonate Fuel cell (MCFC)

Karakter yang mendefinisikan MCFC adalah material yang digunakan untuk elektrolit. Materialnya adalah campuran lelehan dari logam alkali karbonat. Elektrolit yang digunakan merupakan campuran biner dari litium dan potassium atau sodium karbonat yang di deposisikan pada matrik keramik LiAlO₂. Tingginya konduktivitas garam cair dipengaruhi oleh karbonat pada temperatur yang sangat tinggi yaitu 600-700 ° C (Rayment dan Sherwin, 2003).

Untuk jenis MCFC status teknologinya baru pada tahap percontohan dengan kapasitas 30 kW sampai dengan 1 MW (Jepang, Amerika dan Italia). Di samping untuk pembangkit tenaga listrik, jenis ini dapat berfungsi sebaliknya membangkitkan panas dari energi listrik. Permasalahan yang dihadapi dalam percontohan adalah penurunan tegangan, pelarutan katoda dalam elektrolit, dan stabilitas material pada suhu tinggi (Hasan, 2007).



Gambar 2.4 Molten Carbonate Fuel cell (Rayment dan Sherwin, 2003)

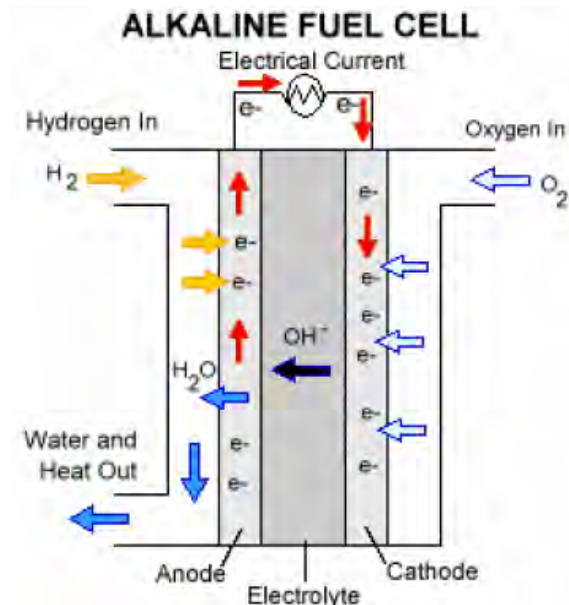


Gambar 2.5 Skematik reaksi Molten carbonate fuel cell (Rayment dan Sherwin, 2003)

MCFC yang ditunjukkan pada Gambar 2.4 & Gambar 2.5, menawarkan efisiensi konversi energi listrik yang tinggi (sekitar 50 % berdasarkan *heat valueable* yang lebih rendah) pada konfigurasi siklus sederhana. Sehingga hal tersebut secara signifikan dapat mengurangi eksploitasi sumber daya yang tidak dapat diperbaharui dan dapat seimbang eksploitasinya antara sumber daya alam yang tidak dapat diperbaharui dan yang dapat diperbaharui (McPhail, 2009)

2.3.4 Alkaline Fuel cell (AFC)

AFC merupakan salah satu desain *fuel cell* tertua dan *fuel cell* pertama kali yang secara nyata dikembangkan untuk sistem tenaga listrik pada pesawat luar angkasa. AFC memanfaatkan konduktivitas dan titik didih yang tinggi dari konsentrasi larutan alkalin (potasium hidroksida) dan beroperasi pada temperatur 100-250 °C. Elektroda yang digunakan adalah nikel dan perak. Elektrolit alkalin yang biasa digunakan yaitu karbon dioksida, karbonat/ elektrolit yang terdegradasi harus dengan sempurna dieliminasi oleh hidrogen dan oksigen yang sudah di purifikasi. Biasanya pada aplikasi pesawat ruang angkasa oksigen dapat dimanfaatkan oleh astronot (Alhassan dkk, 2006). AFC ditunjukkan pada Gambar 2.6



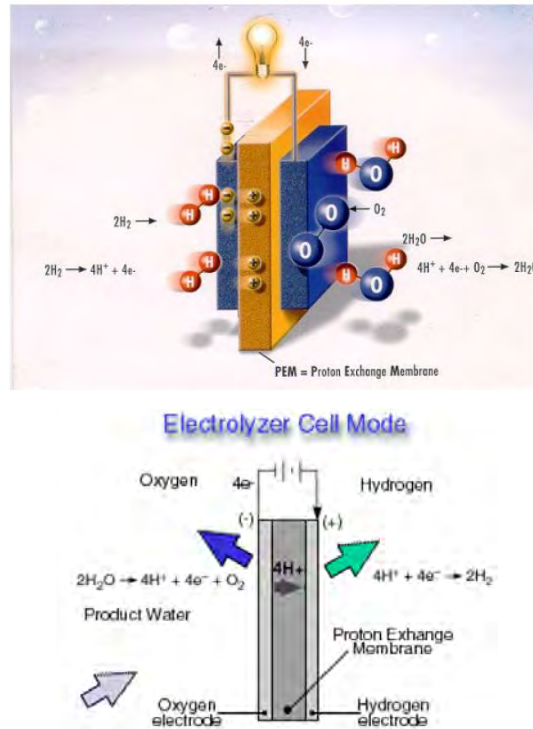
Gambar 2.6 Alkaline fuel cell (Rayment dan Sherwin, 2003)

AFC adalah salah satu *fuel cell* modern pertama yang dikembangkan, pada permulaan tahun 1960. Aplikasinya pada saat itu telah menghasilkan *on-board electric power* untuk pesawat luar angkasa Apollo. Tujuan yang ingin dicapai dari AFC antara lain kinerja yang luar biasa dibandingkan dengan *fuel cell* lain karena *active oxygen kinetic electrode* dan fleksibilitas untuk menggunakan *range* yang luas dari elektrokatalis. AFC yang secara kontinyu digunakan adalah AFC

yang sekarang menghasilkan *on board power* untuk *shuttle orbiter* luar angkasa yang dibuat oleh *Fuel cell UTC* (EG & G Tehnical Services, Inc, 2004).

2.3.5 *Polymer Electrolyte Membrane Fuel cell* (PEMFC)

Atau disebut juga *Solid Polymer Elctrolyte Fuel cell* (SPEFC) atau *Solid Polymer Fuel cell* (SPFC).

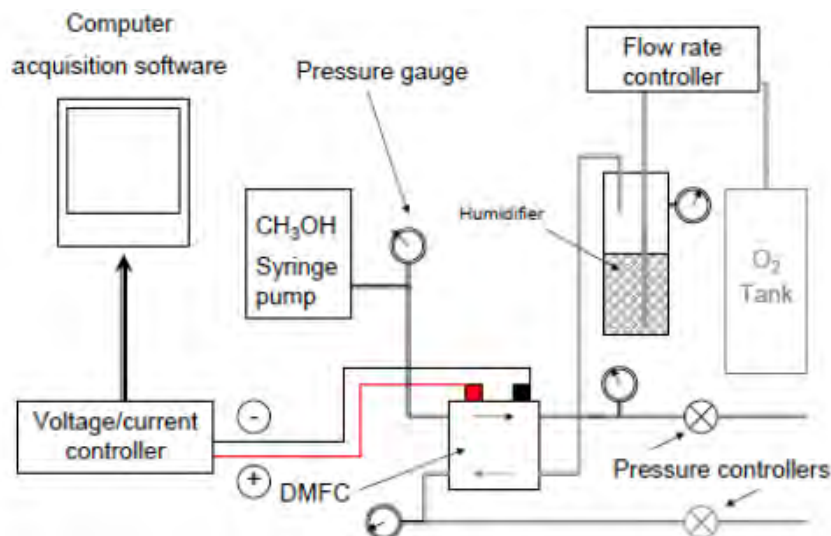


Gambar 2.7 *Polymer Electrolyte Membrane* (PEM) secara umum (Rayment dan Sherwin, 2003)

PEMFC memiliki kemampuan untuk bekerja pada temperatur yang sangat rendah yaitu temperatur 40-80 °C, dimana hal ini merupakan daya tarik utama dari *Polymer Electrolyte Membrane* (PEM). Karena PEMFC memiliki kemampuan untuk menghantarkan seperti densitas tenaga daya yang tinggi pada temperatur ini, PEMFC dapat dibuat lebih kecil yang mana dapat mengurangi berat keseluruhan, biaya untuk memproduksi dan volum spesifik. Karena PEM memiliki membran elektrolit yang terimmobilisasi yang merupakan penyederhanaan pada proses produksinya sehingga dapat menurunkan korosi, hal ini menghasilkan umur hidup *stack* yang lebih panjang. Membran proton

immobilisasi ini merupakan kation *solid-state* yang mentransfer secara medium. Jenis polimer yang digunakan untuk membran tidak memiliki batasan, namun pada umumnya digunakan membran nafion (Rayment dan Sherwin, 2003). Gambar PEMFC ditunjukkan pada Gambar 2.7.

2.4 Direct Methanol Fuel cell (DMFC)



Gambar 2.8 Fuel cell stack direct methanol fuel cell (Hackquard, 2005)

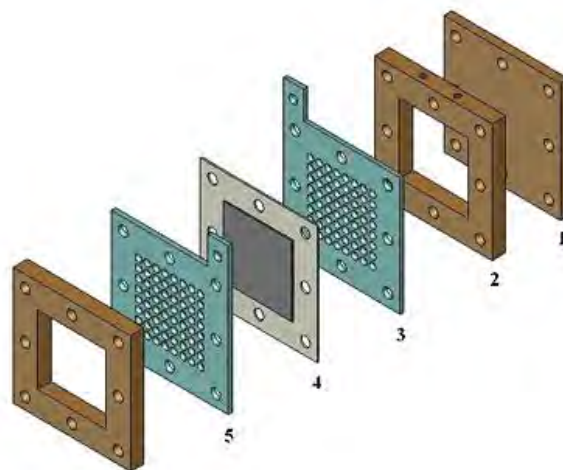
2.4.1. Pendahuluan DMFC

Penggunaan hidrogen murni sebagai bahan bakar *fuel cell* bukan jalan satu-satunya untuk mengkonversi hidrogen menjadi energi listrik yang sangat berguna. Berbagai jenis reaksi dapat menghasilkan hidrogen secara tidak langsung, sehingga memungkinkan terjadinya reaksi kimia pada *fuel cell* hidrogen konvensional. Karena metode penyimpanan, distribusi dan produksi hidrogen yang tepat belum ditemukan oleh industri dan pemerintah, maka dilakukan pengembangan sumber hidrogen alternatif misalnya dari hidrokarbon (bahan bakar fosil atau bahan bakar yang dapat diperbaharui), banyak penelitian dilakukan berharap agar metanol dapat digunakan secara langsung. Karena metanol merupakan zat cair pada kondisi STP (titik didih temperatur 65 °C dan tekanan 1 atm) dan mudah disimpan pada wadah seperti minyak tanah, selain itu juga dapat dibuat dari berbagai macam material berbasis karbon seperti gas alam, batubara dan biomasa.

Direct Methanol Fuel cell (DMFC) merupakan perangkat konversi energi elektrokimia yang mengubah energi kimia bahan bakar metanol secara langsung menjadi listrik, selama bahan bakar dan oksidan masih tersedia. DMFC menjadi kandidat yang menjanjikan dalam aplikasi sumber daya portabel, aplikasi kendaraan listrik dan transportasi. DMFC dapat dikategorikan dalam dua jenis: DMFC aktif dan DMFC pasif. Dalam DMFC pasif, reaktan (metanol dan oksigen) disediakan hingga lapisan katalis serta produk (CO_2 dan air) dikeluarkan dari sel dengan cara pasif yaitu difusi, konveksi alami dan kapiler dll.

Elektron ditransportasikan melalui sirkuit eksternal ke katoda ketika proton menembus membran elektron menuju katoda. Pada *Cathode Catalyst layer* (CCL), oksigen dari atmosfer lingkungan bereaksi dengan elektron dan proton sehingga menghasilkan air.

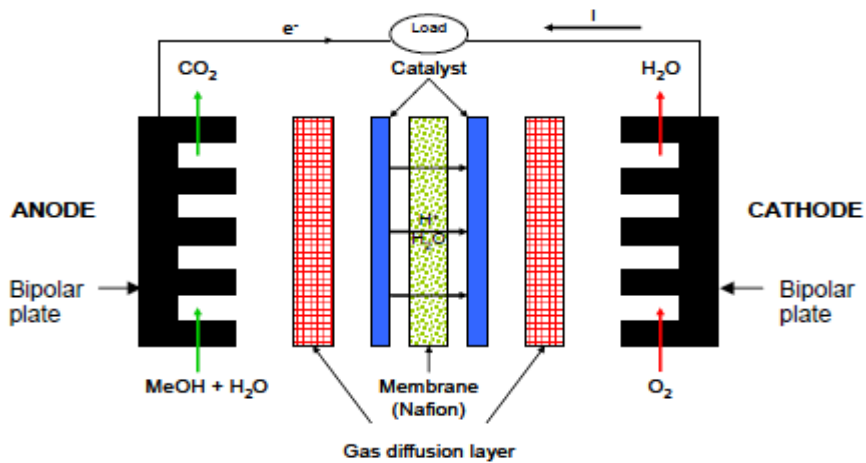
DMFC yang ditunjukkan pada Gambar 2.8 dan Gambar 2.9 terdiri dari tabung penampung larutan metanol, *Membrane Electrode Assembly* (MEA), kolektor arus anoda dan katoda, ujung plat anoda dan katoda (EG & G Tehnical Services, Inc, 2004).



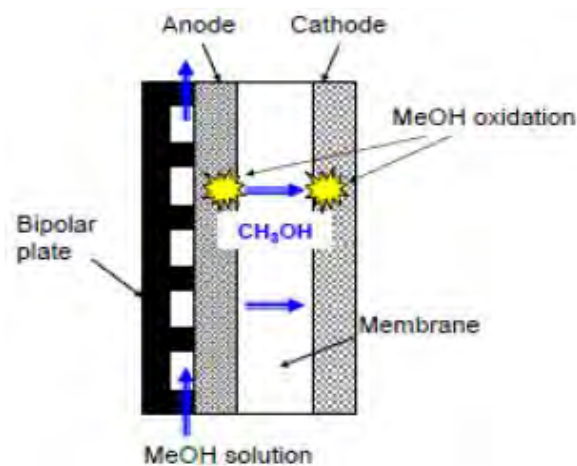
- 1 : *Anode End Plate*
- 2 : *Methanol solution reservoir*
- 3 : *Anode Current Collector*
- 4 : *Membrane Electrode assembly*
- 5 : *Cathode Current Collector*
- 6 : *Cathode end plate*

Gambar 2.9 Skematik *direct methanol fuel cell* Pasif (EG & G Tehnical Services, Inc, 2004).

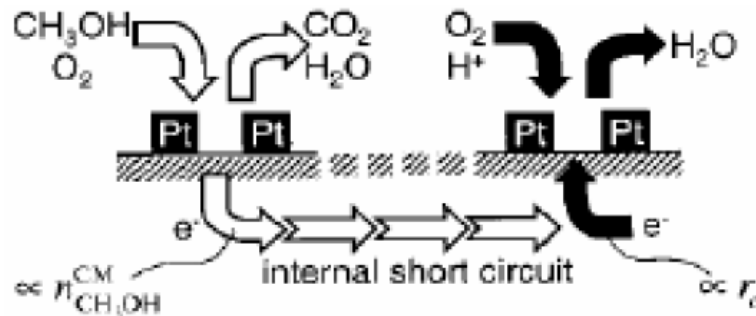
Direct methanol fuel cell (DMFC) dianggap sebagai sumber energi yang sangat menjanjikan. Landasannya yaitu teknologi *polymer electrolyte membrane* (PEM) *fuel cell*, yang memiliki beberapa kelebihan seperti bahan bakarnya likuid, pengisian bahan bakar yang cepat, harga metanol murah dan sel yang padat, desain pembuatannya cocok untuk berbagai aplikasi potensial termasuk aplikasi stationer dan portabel. DMFC juga ramah lingkungan, meskipun menghasilkan karbon dioksida, namun tak ada produksi sulfur atau nitrogen oksida. Pengembangan komersial DMFC masih kurang disebabkan oleh beberapa isu. Salah satunya adalah kerapatan daya yang rendah disebabkan oleh oksidasi elektrokimia metanol pada *crossover* anoda dan metanol yang melalui PEM, dimana bertanggung jawab untuk sangat menghambat aktivitas katoda (Hackquard, 2005).



Gambar 2.10 contoh desain *Direct Methanol Fuel cell* (Hackquard, 2005)



Gambar 2.11 Fenomena *methanol crossover* (Hackquard, 2005)

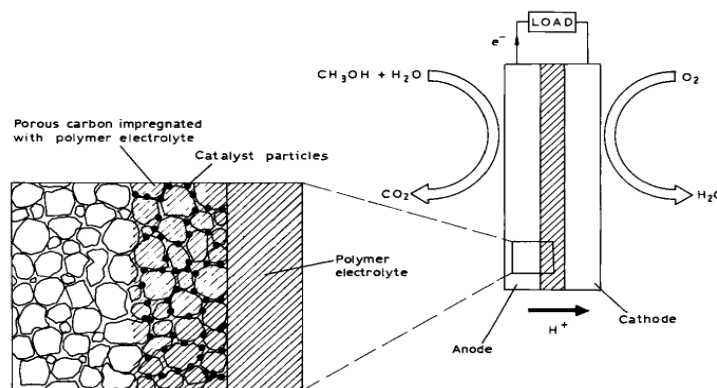


Gambar 2.12 *Internal short circuit* yang dibuat oleh *crossover* (Hackquard, 2005)

Karena efisiensi *fuel cell* yang cukup tinggi maka penggunaan gas alam dapat lebih hemat, sehingga umur penggunaan gas alam diperkirakan dapat diperpanjang hingga tahun 2060. Selain itu, Indonesia memiliki bahan baku yang cukup besar jumlahnya serta cukup lengkap untuk digunakan dalam membangun dan mengembangkan teknologi *fuel cell*.

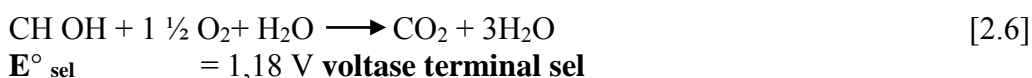
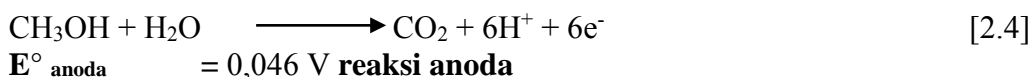
Seperti diketahui bahwa harga *fuel cell* terus menurun sesuai dengan peningkatan perkembangan teknologi. Dalam 15 tahun belakangan ini nilai investasi telah menurun dari US\$ 100.000/ kW menjadi US\$ 3.000/ kW. Diproyeksikan dalam waktu 10 tahun yang akan datang hanya menjadi US\$ 500/kW. Umur *fuel cell* diproyeksikan hingga 10 tahun, dapat bekerja selama 24 jam terus menerus dengan pemadaman untuk perawatan hanya 1 atau 2 kali per tahun (Hasan, 2007).

2.4.2. Prinsip DMFC

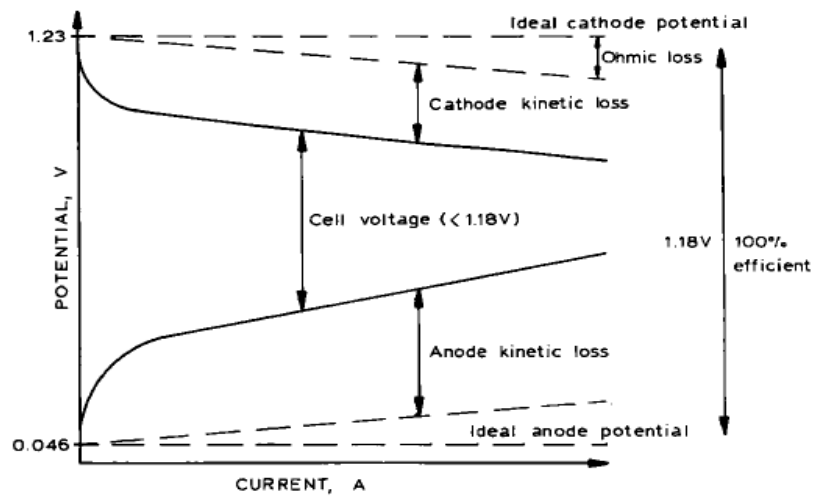


Gambar 2.13 DMFC yang menggunakan *nafion* (Hogarth dkk, 1996).

Skematik dari DMFC ditunjukkan pada Gambar 2.13. Metanol dan air direaksikan secara elektrokimia (metanol dioksidasi) pada anoda untuk memproduksi karbon dioksida, proton dan elektron yang ditunjukkan pada persamaan 2.4. DMFC harus memiliki elektrolit asam untuk membantu penolakan karbon dioksida, karena karbonat yang tidak larut terbentuk pada elektrolit alkalin. Proton yang telah diproduksi pada anoda berpindah melalui elektrolit polimer ke katoda dimana terjadi reaksi dengan oksigen (biasanya dari udara) untuk menghasilkan air, yang ditunjukkan pada persamaan 2.5. Elektron dihasilkan pada perubahan energi bebas pembawa anoda dari reaksi kimia dan membawanya melewati lintasan eksternal dimana mereka dapat digunakan untuk melakukan kerja yang berguna, seperti tenaga sebuah motor listrik. Reaksi sel keseluruhan ditunjukkan pada persamaan 2.6, yang merupakan reaksi metanol dan oksigen untuk menghasilkan air dan karbondioksida. Pada sistem yang ringkas, reaksi ini didorong oleh paduan material elektrokatalis berbasis platina pada elektroda.

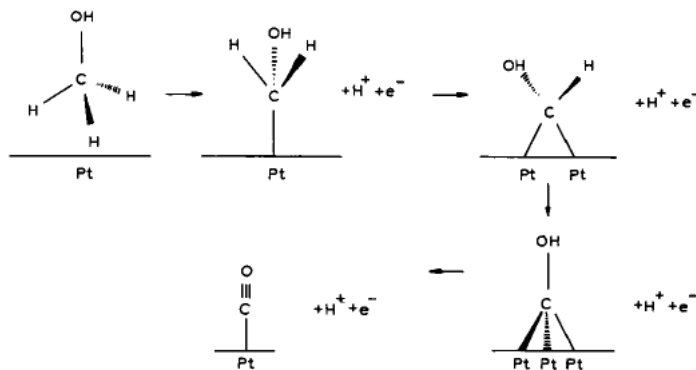


Pada prinsipnya metanol seharusnya dioksidasi secara spontan ketika potensial anoda sekitar 0,046 V, yang berhubungan dengan elektrode hidrogen reversibel (RHE). Demikian pula, oksigen seharusnya dikurangi secara spontan ketika katoda menunjukkan potensial dibawah 1,23 V. pada kenyataannya dan pada umumnya semua tipe *fuel cell*, kinetik elektrodanya rendah (kehilangan kinetik) karena reaksi elektroda untuk menyimpang dari nilai termodinamika ideal sehingga terjadi reduksi singkat dimana efisiensi teoretikalnya sangat tinggi yang memungkinkan dari sel. Perilaku yang umum dari elektroda individu pada sistem DMFC ditunjukkan pada Gambar 2.14. Pada kenyataannya, potensial yang jauh lebih positif dipersyaratkan pada anoda dan lebih negatif pada katoda untuk mempercepat reaksi terhadap kecepatan yang sesuai. Disamping hilangnya kinetik, ada kehilangan ohmic yang menyimpang dari resistansi internal *fuel cell*. Oleh karena itu, output yang nyata DMFC secara substansi lebih rendah dari pada sel ideal, yang telah diberikan 1,18 V pada berbagai kecepatan arus (Hogarth dkk, 1996).



Gambar 2.14 kurva arus/potensial terhadap anoda dan katoda (Hogarth dkk, 1996).

kehadiran generasi sistem berbahan bakar hidrogen kinetik dari reaksi oksidasi hidrogen pada anoda secara relatif mudah dan paling banyak losses hanya terjadi pada katoda. Hal ini praktis memungkinkan Hz/udara PEMFC untuk mendapatkan densitas tenaga sel yang sangat tinggi 500 hingga 600 mW/cm² pada potensial tenaga sel yang efisien 0,6 hingga 0,7 V. Karena itu tambahan kinetik yang lebih rendah dari anoda DMFC, tidak seperti tingginya densitas tenaga yang akan dicapai pada saat potensial sel secara praktek. Bagaimanapun, karena kebutuhan *reformer* bahan bakar (yang berhubungan dengan kehilangan volum dan efisiensi) dihilangkan, hal ini memungkinkan metanol/udara pada DMFC menjadi kompetitif dengan pembanding berbahan bakar hidrogen, densitas tenaga yang lebih rendah 200 hingga 300 mW/cm² dapat diperoleh pada voltase sel 0,5 V (Hogarth dkk, 1996).



Gambar 2.15 elektrosorpsi permukaan metanol pada elektrolit asam sulfat (Hogarth dkk, 1996)

2.4.3. Material *advance*.

Beberapa *material advanced* yang telah dikembangkan menunjukkan peningkatan aktivitas, dan sejumlah penjelasan hasil perhitungan. Seperti:

- a Metal sekunder (sebagai contoh rutenium) memodifikasi sifat elektronik katalis. Melemahkan ikatan kimia antar platina dan *surface intermediate*.
- b Metal sekunder (sebagai contoh, rutenium, timah, timbal dan rodium) tidak stabil dan tidak dapat larut pada paduan dimana menyisakan *reticulate* yang sangat banyak dan permukaan aktif. Hasilnya sejumlah peningkatan area yang lebih luas yang berhubungan dengan proses elektrosorpsi metanol. Sebagai tambahan, area koordinat yang rendah dapat lebih mudah dioksidasi, memberikan peningkatan terhadap spesies Pt-OH_{ads}, pada potensial yang jauh lebih rendah pada planar Pt yang dioksidasi.
- c Metal sekunder (seperti rutenium, timah dan tungsten) dapat menghasilkan area dengan OH_{ads} yang tidak jauh dari platina, melalui proses spillover. Oleh karena itu, aktivitas katalis diatur oleh potensial dimana metal sekunder mengoksidasi dan mendonasikan OH_{ads} pada area platina yang berdekatan. Untuk material seperti rutenium, hal ini dapat terjadi pada potensial yang lebih rendah secara signifikan, dibawah 250 mV, dari pada yang mungkin pada permukaan platina (6-9) dan tentunya adanya katalis yang paling aktif berdasarkan material paduan platina dan rutenium (Hogarth dkk, 1996).

Selain *fuel cell* yang dijelaskan diatas, masih banyak berbagai fuel lain. Untuk melihat fuel dan perbedaannya dapat dilihat pada Tabel 2.1.

Tabel 2.1 Jenis *fuel cell*

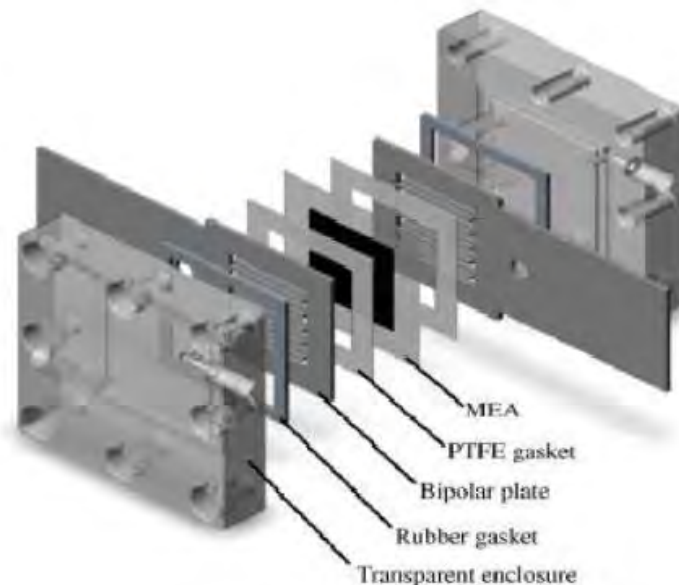
	PEFC <i>(Polymer Electrolyte Fuel cell)</i>	AFC <i>(Alkaline Fuel cell)</i>	PAFC <i>(Phosphoric Acid Fuel cell)</i>	MCFC <i>(Molten Carbonate Fuel cell)</i>	SOFC <i>(Solid Oxide Fuel cell)</i>
Elektrolit	Membran polimer (tidak ada larutan elektrolit)	Potassium hidroksida	Asam Phosphorik likuid immobilisasi pada SiC	Karbonat lelehan immobilisasi pada LiAlO ₂	Perovskit (keramik)
Elektroda	Karbon	Serbuk Ni yang telah disinter, karbon, metal raney	Karbon	Nikel dan nikel oksida	Perovskit & perovskit/ logam cermet
Katalis	Platina	Platina	Platina	Tidak ada	Tidak ada
Interkoneksi	Karbon / logam	Logam	Grafit	Baja tahan karat atau nikel	Nikel, keramik, atau baja
Temperatur operasi (°C)	40-80	65-220	205	650	600-1000
Pembawa muatan	H ⁺	OH ⁻	H ⁺	CO ₃ ⁻	O ⁻
Eksternal <i>reformer</i> untuk bahan bakar hidrokarbon	Ada	Ada	Ada	Tidak ada (tidak, untuk beberapa bahan bakar)	Tidak ada (tidak, untuk beberapa bahan bakar)
Konversi pergeseran eksternal CO ke hidrogen	Ya, tambah purifikasi untuk menghilangkan sisa CO	Ya, tambah purifikasi untuk menghilangkan sisa CO	Ada	Tidak ada	Tidak ada
Komponen sel utama	Berbasis karbon	Berbasis karbon	Berbasis grafit	Berbasis baja tahan karat	Keramik
Pengaturan produk air	Evaporatif	Evaporatif	Evaporatif	Produk gas	Produk gas
Pengaturan produk panas	Proses gas + media pendingin likuid	Proses gas + sirkulasi elektrolit	Proses gas + media pendingin likuid atau generasi uap	<i>Reforming</i> internal + gas proses	<i>Reforming</i> internal + gas proses
Daya (kW)	50-250	0.3-5	200	2000	100
efisiensi	40-50	70 %	40-80 %	±60 %	60%

Sumber : EG & G Technical Service, Inc, 2004

2.5 Sistem *Fuel cell*

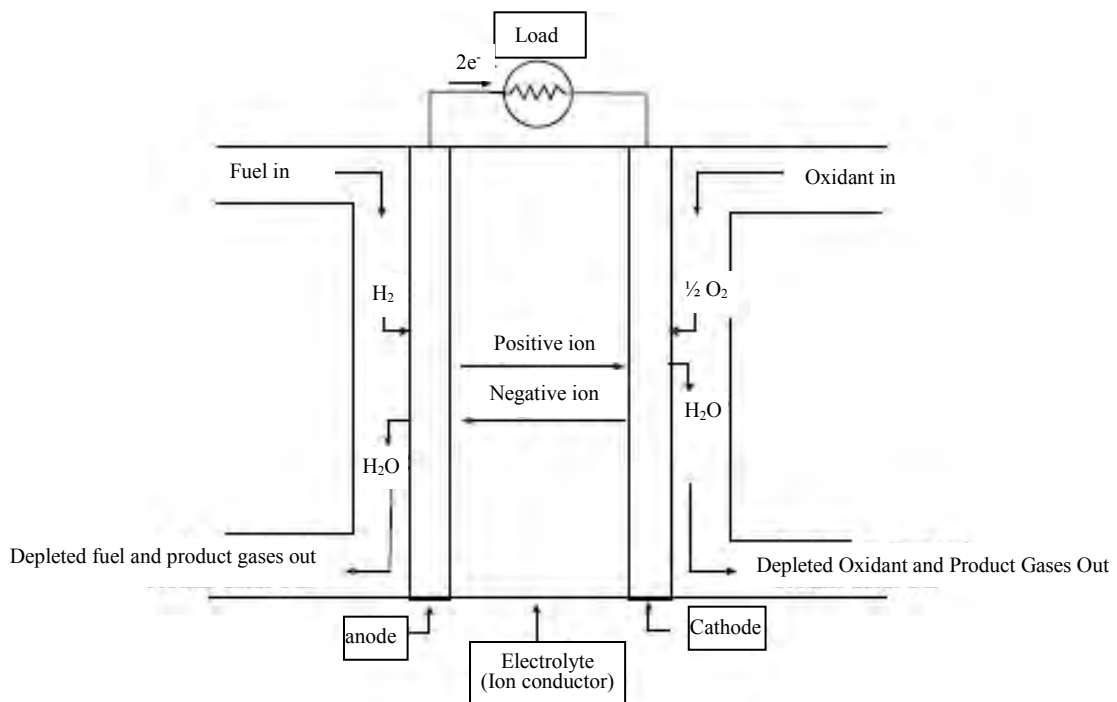
Pada dasarnya pembangkit listrik *fuel cell* terdiri atas sub-sistem utama, yaitu : *Fuel processing* yang berfungsi mengkonversikan *fuel* (gas alam, propana, metanol, batubara, dan lain-lain) ke dalam hidrogen. Dan *fuel cell stack* di mana proses elektrokimia akan terjadi pada sub-sistem ini, dan akan menghasilkan listrik. Sedangkan unit *power conditioning* berfungsi mengkonversikan listrik DC menjadi listrik AC.

Proses penting yang terjadi pada subsistem *fuel cell* adalah proses elektrokimia di mana reduksi-oksidasi gas hidrogen akan menentukan efisiensi listrik yang dihasilkan. Tentunya hal ini dikaitkan dengan beberapa komponen pokok sehingga aliran gas, reduksi-oksidasi gas, aliran proton dan elektron yang dapat berjalan sehingga efisiensi sistem pembangkit listrik dapat dicapai (EG & G Technical Service, Inc, 2004).



Gambar 2.16 *Fuel cell stack* (EG & G Technical Service, Inc, 2004)

Untuk mendapatkan gambaran secara jelas dari sistem *fuel cell* ini, dapat dilihat pada Gambar 2.16 untuk *fuel cell stack* dan Gambar 2.17 untuk skematik *fuel cell* .



Gambar 2.17 Skematik *fuel cell* individu (EG & G Technical Service, Inc, 2004).

Sedangkan jika dilihat dari skematik *fuel cell* , bagian-bagian *fuel cell* terdiri dari :

a. Membran Elektrolit

Komponen ini mempunyai pori yang sangat kecil sehingga tidak mengijinkan atom hidrogen untuk melewati pori membran. Membran elektrolit ini bersifat *proton exchange* (H^+) di mana dalam strukturnya akan terjadi suatu mekanisme pertukaran ion sehingga konduktivitas proton yang diharapkan pada kondisi *humidified membrane* adalah 2×10^{-2} S/cm (ketahanan 0,05 ohm cm^2 untuk membran dengan ketebalan 50 mikrometer). Selain itu ketahanan dan kestabilan terhadap zat kimia dan termal ($300\text{ }^\circ\text{C}$) sangatlah menentukan *performance* arus yang dihasilkan.

b. Katalis

Pada komponen ini akan terjadi proses reduksi-oksidasi gas di mana proton dan elektron akan dihasilkan. Dengan ketebalan yang cukup kecil (5 – 50 mikrometer) diharapkan mempunyai kontak yang cukup baik dengan membran, sehingga akan terjadi mekanisme transfer proton yang cukup baik. Berkaitan dengan reduksi oksidasi dan air yang dihasilkan sebagai hasil reaksi (katoda) maka hal lain yang dipersyaratkan adalah komponen ini mengandung bahan yang

bersifat konduktif terhadap proton, konduktif terhadap elektron dan bersifat hidropobik terhadap air. Oleh karena itu proses penggabungan antara ketiga bahan tersebut diperlukan teknologi dan ilmu yang tidak mudah.

c. Gas Diffuser (*Backing Electrode*)

Komponen dengan ketebalan (100 – 300 mikrometer) adalah komponen yang berhubungan langsung dengan lapisan katalis, dibuat dari bahan yang berpori, bersifat konduktif terhadap elektron dan bersifat hidropobik, sehingga mampu mendistribusikan gas dan air sekaligus sebagai transfer elektron.

d. Current Collector

Komponen ini terdapat pada bagian luar satu unit sel yang merupakan *plate current collector* yang mengandung *machine gas flow field*. Karakteristik penting dari *current collector* ini adalah bersifat konduktif terhadap elektron, mampu mendistribusikan gas, dan impermeabel terhadap gas (Hasan, 2007).

2.6 Aplikasi Sistem *Fuel cell*

Sebagai pembangkit listrik (*Stationary Power Generation*) properti sistem ini bersih dari pencemaran udara dan tidak bising, akan sangat cocok jika digunakan di rumah sakit, perumahan yang padat, apartemen, dan instalasi penting baik sipil maupun militer. Penggunaan sumber energi *fuel cell* pada kapal selam mempunyai beberapa keuntungan, yaitu pada saat menyelam, mesin diesel dimatikan dan mesin listrik dengan *fuel* dihidupkan. Dengan tidak adanya suara mesin menyebabkan kapal selam ini susah terdeteksi oleh sonar kapal selam lawan. Di samping itu sisa proses berupa air bersih dapat dimanfaatkan oleh awak kapal.

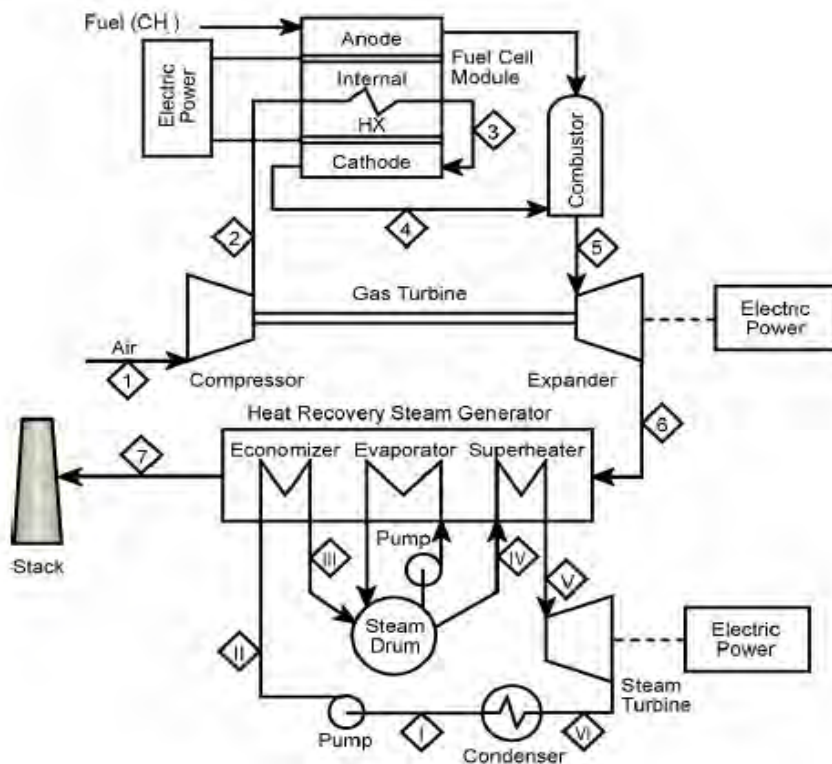
Seperti diketahui bahwa dari data yang ada sekitar 15 juta rumah tangga di Indonesia belum teraliri listrik dari PLN sampai dengan tahun 2000, dan sampai dengan 5 – 10 tahun mendatang diperkirakan PLN tidak akan memiliki kemampuan untuk investasi skala besar dalam memperluas jaringannya. *Fuel cell* sebagai pembangkit listrik merupakan salah satu teknologi yang berpotensi untuk diaplikasikan dalam pemenuhan kebutuhan listrik penduduk. Dengan keunggulan *fuel cell* yang sangat fleksibel dalam penggunaan bahan bakar, bentuknya yang modular dan mudah dioperasikan serta tidak memerlukan jaringan, maka *fuel cell*

sangat cocok untuk diaplikasikan pada daerah terpencil. *Fuel cell* juga cocok diaplikasikan untuk keperluan penyediaan listrik pada sistem TV *repeater*, signal lampu kereta, dan keperluan lainnya yang membutuhkan catu daya listrik yang relatif kecil (Hasan, 2007).

2.6.1 Penerapan *Fuel cell* Sebagai Pembangkit Listrik Skala Kecil

Di Indonesia bahan bakar fosil (*primary energy*) merupakan bahan bakar utama untuk pembangkit listrik. Pada tahun 2003 kebutuhan energi untuk pembangkit listrik di Indonesia diproyeksikan akan mencapai 192.080 GWH, 86% nya dipenuhi oleh bahan bakar fosil. Untuk keperluan tersebut batubara akan dibakar sebanyak 61,394 juta ton, sedangkan konsumsi minyak dan gas bumi diproyeksikan akan melebihi produksi minyak dan gas bumi sehingga dikhawatirkan Indonesia akan mengimpor minyak pada saat ini. Melihat proyeksi kebutuhan energi yang besar ini dan guna meningkatkan peran swasta menengah, pemerintah telah mengeluarkan pola mekanisme kerjasama dalam bidang pembangkit listrik antara PLN dan swasta. Diharapkan swasta menengah dapat berpartisipasi pada proyek ketenagalistrikan berskala kecil, dalam hal : konsultasi, rekayasa peralatan pembangkit listrik, pembangunan dan pemasangan serta pemeliharaan peralatan, menunjang penyediaan tenaga listrik dan tenaga ahlinya. Peningkatan permintaan energi listrik di seluruh dunia menyebabkan pemacuan penelitian untuk meningkatkan efisiensi berbagai teknologi pembangkit listrik, antara lain :

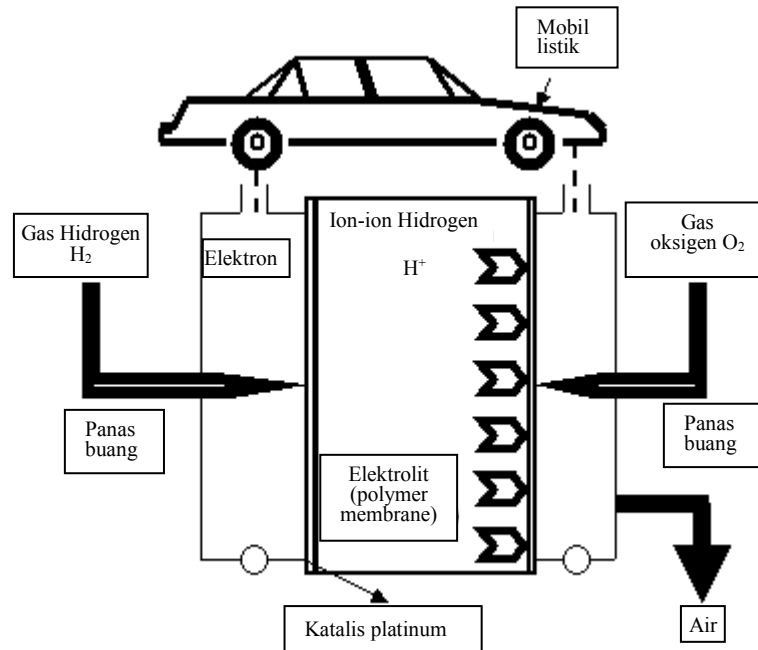
- a. *Conventional Steam Turbine (gas/coal)*
- b. *Combined Cycle (steam and gas)*
- c. *Pressurized fluidized – Bed Combustion*
- d. *Steam – Injected Gas Turbin*
- e. *Intercooled Steam – Injected Gas Turbin*
- f. *Fuel cell*



Gambar 2.18 *Steam turbin fuel cell* (EG & G Technical Service, Inc, 2004).

Dari beberapa jenis *fuel cell* yang ada, masing-masing mempunyai spesifikasi dalam aplikasinya, karena hal ini berkaitan dengan kondisi operasi *fuel cell* tersebut. *Fuel cell* dengan kondisi operasi pada suhu seperti PEMFC cocok digunakan sebagai pembangkit listrik skala kecil (*portable power*) sedangkan *fuel cell* dengan suhu operasi menengah dan suhu tinggi seperti : PAFC, MCFC, dan SOFC sangat cocok untuk aplikasi pembangkit listrik skala besar (*power plant*) karena mampu untuk diaplikasikan pada kogenerasi dan siklus yang dikombinasikan. Pengembangan PEMFC sebagai *stationary power generation* banyak diaplikasikan pada pemenuhan listrik untuk perumahan dengan kapasitas 1 – 7 kW. Untuk keperluan listrik perumahan, PEMFC dapat menggunakan bahan bakar gas alam atau LPG setelah melalui proses reformasi menjadi gas hidrogen (Hasan, 2007).

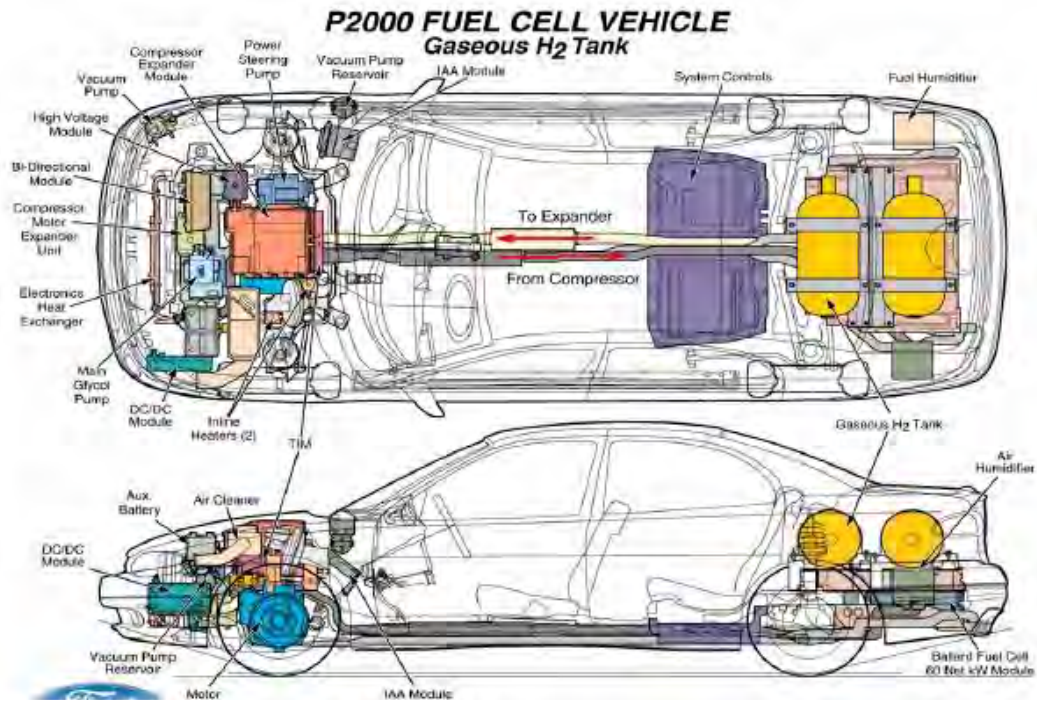
2.6.2 Penerapan *Fuel cell* di Sektor Transportasi



Gambar 2.19 Prinsip kerja mobil listrik *fuel cell* (Hasan, 2007).

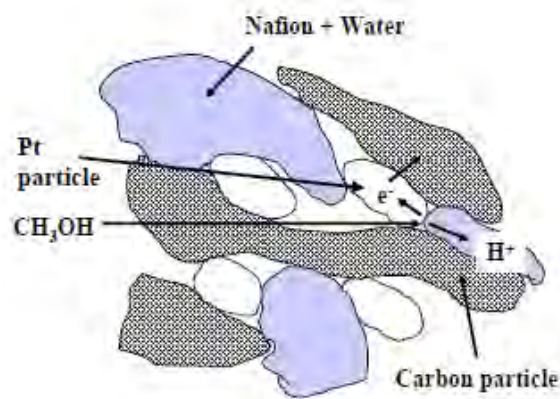
Suatu alat transportasi sangat berhubungan dengan berat total kendaraan, dan bahan bakar yang digunakan merupakan suatu zat dari sistem yang mempengaruhi berat total kendaraan dan kinerjanya. Jika digunakan bahan bakar yang mempunyai nilai kalor tinggi, maka kinerja akhir kendaraan dapat dikatakan baik. Seperti diketahui, hidrogen sebagai energi alternatif merupakan senyawa bahan bakar yang pada saatnya nanti menjadi suatu sumber energi yang sangat potensial, bersih, dan efisien. Bila hidrogen digunakan sebagai bahan bakar *fuel cell*, maka mobil listrik akan menjadi ringan dibandingkan bahan bakar lain. Hal ini disebabkan energi per satuan beratnya lebih tinggi.

Pengembangan mobil listrik dengan baterai konvensional dirasakan tidak reliabel karena jarak tempuhnya pendek dan waktu pengisian baterai yang lama jika dibandingkan dengan mobil konvensional. Namun dengan adanya teknologi *fuel cell* dan pengisian baterai hal tersebut dapat diatasi. Pada beberapa jenis prototipe mobil listrik selain tangki penyimpanan gas hidrogen juga digunakan reformer di mana campuran metana dan air dirubah menjadi gas hidrogen (Hasan, 2007). Sebagai salah satu contoh penerapan *fuel cell* pada mobil listrik dapat dilihat pada Gambar 2.19 dan Gambar 2.20.



Gambar 2.20 Desain *fuel cell car* oleh Ford (*American Physical Society, 2003*)

2.7 Katalis

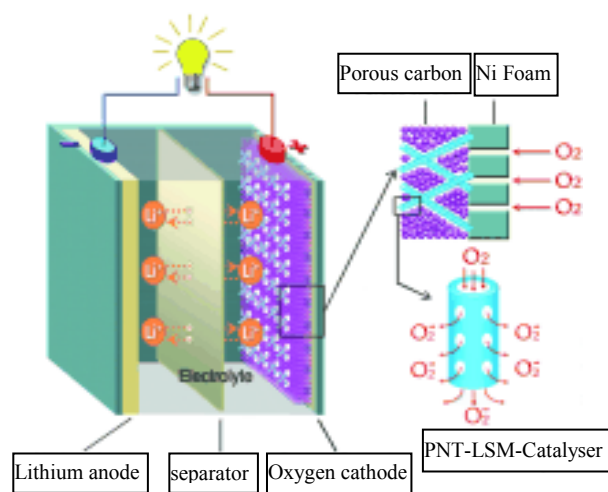


Gambar 2.21 Struktur katalis (Hackquard, 2005)

Katalis yang ditunjukkan oleh Gambar 2.21 adalah suatu zat yang mempercepat laju reaksi kimia pada suhu tertentu, tanpa mengalami perubahan atau terpakai oleh reaksi itu sendiri. Suatu katalis berperan dalam reaksi tapi

bukan sebagai pereaksi ataupun produk. Katalis memungkinkan reaksi berlangsung lebih cepat atau memungkinkan reaksi pada suhu lebih rendah akibat perubahan yang dipicunya terhadap pereaksi. Katalis menyediakan suatu alternatif dengan energi aktivasi yang lebih rendah. Katalis mengurangi energi yang dibutuhkan untuk berlangsungnya reaksi. Katalis dapat dibedakan ke dalam dua golongan utama: katalis homogen dan katalis heterogen. Katalis heterogen adalah katalis yang ada dalam fase berbeda dengan pereaksi dalam reaksi yang dikatalisinya, sedangkan katalis homogen berada dalam fase yang sama. Satu contoh sederhana untuk katalisis heterogen yaitu bahwa katalis menyediakan suatu permukaan di mana pereaksi-pereaksi (atau substrat) untuk sementara terjerap. Ikatan dalam substrat-substrat menjadi lemah, sehingga memadai untuk terbentuknya produk baru. Ikatan antara produk dan katalis lebih lemah, sehingga akhirnya terlepas (Lerner, 2011).

Elektrokatalis seperti Gambar 2.22 adalah katalis yang berpartisipasi pada reaksi elektrokimia. Material katalis memodifikasi dan meningkatkan kecepatan reaksi kimia tanpa digunakan pada saat proses. Elektrokatalis adalah bentuk spesifik dari katalis yang berfungsi pada permukaan elektrode atau mungkin pada elektrode itu sendiri. Sebuah elektrokatalis dapat menjadi heterogen seperti permukaan platina atau nanopartikel, atau homogen seperti koordinasi kompleks atau enzim. Elektrokatalis membantu pada proses transfer elektron antara elektroda dan reaktan, dan memfasilitasi transformasi kimia intermediet yang dideskripsikan oleh keseluruhan atau setengah reaksi (Kunze, 2009).



Gambar 2.22 Elektrokatalis (EG & G Technical Service, Inc, 2004).

2.8 Grafit

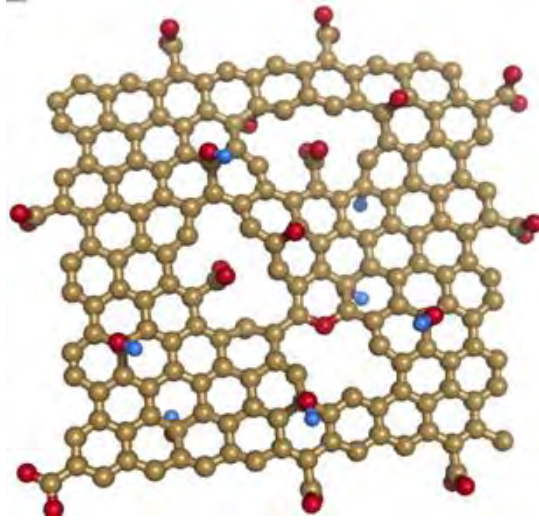
Grafit merupakan allotropi karbon yang mempunyai pori dan konduktivitas termal yang tinggi sehingga dapat berfungsi sebagai penghantar arus. Grafit banyak dimanfaatkan, antara lain sebagai bahan konstruksi dalam peralatan kimia, bahan batu baterai, dan reaktor nuklir. Salah satu penggunaan grafit yang potensial adalah sebagai komponen batu baterai. Grafit dari sisa batu baterai masih bisa dimanfaatkan. Salah satu pemanfaatannya antara lain adalah sebagai komponen dalam Elektroda Selektif Ion (ESI). Selain itu grafit juga dikembangkan menjadi material *graphene* yang sedang menjadi topik hangat. Grafit ditunjukkan oleh Gambar 2.23 (Choi dan Lee, 2012).



Gambar 2.23 Grafit

2.9 *Graphene* Oksida

Variasi yang menarik pada *graphene* adalah *graphene* oksida (GO) ditunjukkan pada Gambar 2.24 yaitu isolasi secara elektronik dari *graphene* yang konduktivitas listriknya sangat tinggi. Kisi karbon GO terdiri dari daerah aromatik yang mengandung cincin benzena yang tidak teroksidasi, sebaliknya daerah dengan cincin alifatik beranggota enam tergantung pada tingkat oksidasi. Bidang basal yang dilaporkan terutama mengandung grup hidroksil dan epoksi oksigen, sementara tepi terutama mengandung gugus hidroksil dan karboksil. Membran GO telah diamati sangat kedap terhadap berbagai macam cairan, uap dan gas, sementara memungkinkan perembesan air, yang mengindikasikan ketertarikan untuk hidrasi, sehingga meminimalkan *crossover* bahan bakar di PEMFC (Bayer dkk, 2014).



Gambar 2.24 Gambar nanostruktur *graphene* oksida (Bayer dkk, 2014)

2.10 *Graphene*

2.10.1 Pendahuluan *graphene*

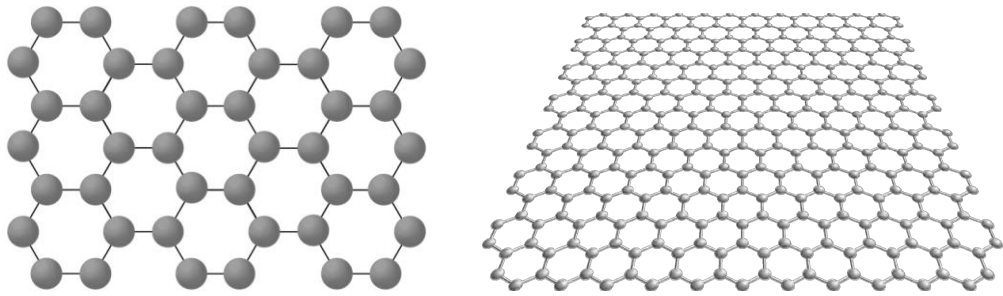
Untuk beberapa tahun ini *graphene* dianggap sebagai sebuah material “akademik” karena sempurnanya struktur lapisan tunggal sarang lebah dari atom karbon yang diperlakukan hanya sebagai model teoretikal untuk deskripsi sifat dari material berbasis karbon seperti grafit, *fullerene* dan *carbon nanotubes*. Prediksi teoritikal yang dulu mempelajari kemurnian kristal dua dimensi, menduga *graphene* akan menjadi tidak stabil karena fluktuasi termal yang mencegah kristalin jangka panjang agar berada pada batas temperaturnya. Dugaan ini didukung dengan baik oleh berbagai investigasi penelitian dengan lapisan tipis yang mana sampel menjadi tidak stabil karena ketebalannya yang direduksi. Akhir-akhir ini pada abad ke-21, *graphene* telah muncul sebagai sampel yang nyata. Pekerjaan yang diawali oleh Geim dan Novoselov yang ditunjukkan oleh isolasi dari lapisan karbon tipis yang mengherankan dan hasilnya adalah *graphene* lapisan tunggal dengan hanya menggunakan tape scotch. Sejak penemuannya, berbagai fenomena fisik dieksplorasi menggunakan *graphene* yang telah berkembang dengan sangat cepat dan menginspirasi berbagai macam aplikasi teknologi baru. Didorong oleh aplikasi potensi untuk masa depan seperti transistor elektron tunggal yang menunjukkan fleksibilitas dan sel surya, beberapa upaya penelitian sedang dikhususkan terhadap pengertian sifat fisik utama dari *graphene*.

Untuk alasan ini, berikut subbab dari ulasan ini bertujuan untuk memperkenalkan pembaca mengenai fitur dasar *graphene* sebagai partikel, struktur elektronik unik dan hubungan sifat transport listrik. Kemudian, penilaian mengenai aspek sifat fisik penting yang lain dari *graphene* diluar sifat listriknya merupakan ulasan yang termasuk sifat mekanik, magnetik, dan termalnya (Choi dan Lee, 2012).

Graphene adalah sebuah subjek dari perhatian besar karena struktur unik dan sifat yang sangat bagus contohnya konduktivitas elektronik yang cukup baik, luas permukaan spesifik yang benar-benar tinggi, rasio luas permukaan terhadap volume dan stabilitas yang tinggi. Sifat unggul *graphene* memungkinkannya menjadi pendukung katalis yang cocok. Banyak studi yang berhubungan dengan katalis yang disupport oleh *graphene* dan aplikasinya pada *fuel cell* telah dipublikasikan (Hsieh dkk, 2013).

Graphene merupakan material yang menarik. Memiliki luas permukaan spesifik teoritik yang besar ($2630 \text{ m}^2/\text{g}$), mobilitas intrinsik tinggi ($200.000 \text{ cm}^2/\text{vs}$), modulus young tinggi ($\sim 1.0 \text{ TPA}$), konduktivitas termal ($\sim 5000 \text{ W/mK}$), transmitansi optiknya ($\sim 97,7\%$) dan sebagai perhatian lebih konduktivitas listrik yang baik untuk aplikasi seperti elektroda konduktif transparan, dan lebih banyak lagi aplikasi potensial lainnya. *Graphene* eksperimental telah dipelajari selama lebih dari 40 tahun dan pengukuran sifat perpindahan pada lapisan-lapisan yang terkelupas secara mikro mekanik, *graphene* tumbuh pada (SiC), luasan *graphene* tumbuh pada substrat tembaga (Cu), sebaik berbagai penelitian yang melibatkan penggunaan *Chemically Modified Graphene* (CMG) untuk membuat material-material baru.

Graphene, lapisan tunggal dari karbon grafitik, telah menjadi topik hangat dalam bahan penelitian karena sifat yang luar biasa, misalnya mobilitas intrinsik tinggi, luas permukaan, dan modulus young yang besar. Karena sifat ini, *graphene* adalah bahan yang ideal untuk digunakan dalam PEMFC sebagai pendukung katalis, atau sebagai katalis yang tidak murni. Struktur dari *graphene* ditunjukkan Gambar 2.25 (Bayer dkk, 2014).

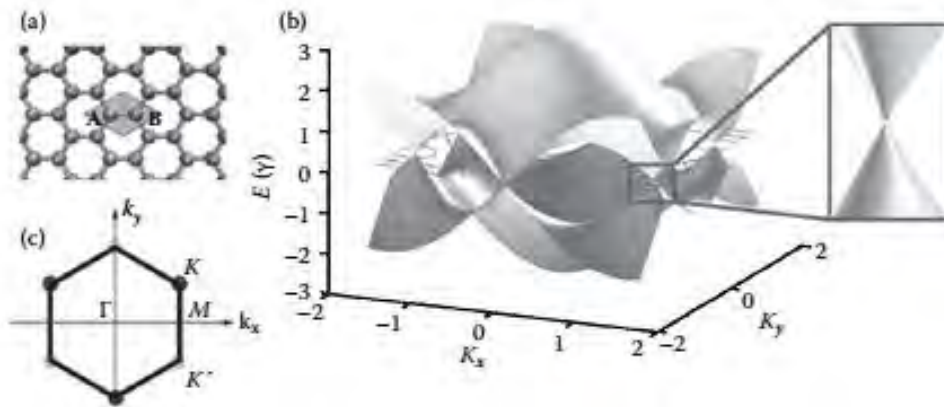


Gambar 2.25 Nanostruktur *Graphene* (Bayer dkk, 2014)

2.10.2 Sifat elektronik dasar dari struktur berbasis *graphene*

Graphene di definisikan sebagai sebuah lapisan tunggal dari atom karbon yang diatur pada kisi heksagonal, yang di ilustrasikan pada Gambar 2.26(a). Struktur atomiknya dapat juga digunakan sebagai pondasi untuk mendirikan material berbasis karbon yang lain, yaitu : (1) dapat dilipat menjadi *fulrene*. (2) Digulung menjadi *nanotube* atau (3) ditumpuk menjadi grafit. Sel primitif dari *graphene* mengandung 2 atom yang tidak ekuivalen, A dan B, dan ini adalah 2 sub kisi yang berbeda diakibatkan oleh jarak karbon-karbon. $A_{c-c} = 1.44 \text{ \AA}$.

Atom karbon tunggal memiliki 4 elektron valensi dengan kondisi dasar konfigurasi kulit elektronik dari $[\text{He}] 2s^2 2p^2$. Pada kasus *graphene*, ikatan kimia karbon-karbon yang menyebabkan hibridisasi orbital yang diteruskan oleh superposisi 2s dengan orbital $2p_x$, dan $2p_y$. Orbital planar terbentuk stabil secara energi dan terlokalisasi ikatan- σ dengan 3 atom karbon tetangga terdekat pada kisi sarang madu, dan mereka responsibel untuk kebanyakan energi *binding* dan untuk sifat elastik dari lembaran *graphene*. Sisa orbital $2p_x$ bebas menunjukkan orientasi simetri π dan tumpang tindih dengan orbital ini sehingga antar atom tetangga memainkan sebuah peran utama pada sifat elektronik *graphene*. Untuk alasan ini, sebuah hipotesis untuk mendeskripsikan struktur elektronik *graphene* adalah untuk mengadopsi hipotesis ikatan tetangga terdekat orthogonal yang kuat dimana mengasumsikan bahwa kondisi elektroniknya dapat dengan mudah ditunjukkan oleh kombinasi linear orbital $2p_x$. Pemecahan persamaan Schrodinger, yang mereduksi ke persamaan sekular matrik, salah satunya dapat memperoleh hubungan dispersi energi dari pita π (ikatan) dan π^* (anti ikatan).



Gambar 2.26 (a) Kisi sarang madu dari *graphene*. Daerah yang dibayangi menggambarkan unit sel *graphene* dengan 2 atom non-ekuivalennya yang ditandai oleh A dan B. (b) Dispersi energi pita diperoleh melalui perkiraan ikatan kuat. Sisipan sorotan dispersi bentuk kerucut sekitar titik pengisian secara netral. (c) Zona Brillouin pertama (Choi dan Lee, 2012).

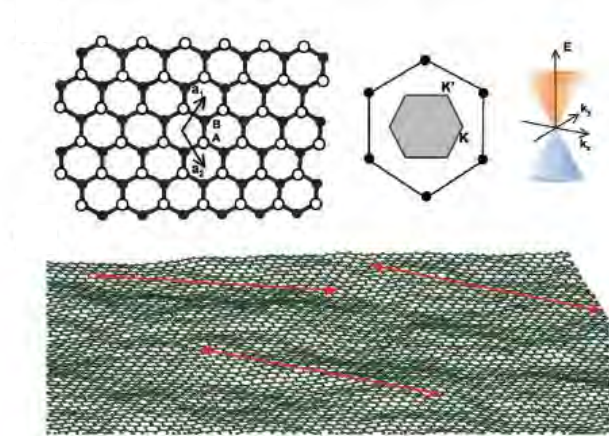
Struktur elektronik *graphene* dapat juga ditunjukkan oleh persamaan bentuk tertutup yang diperoleh secara analitikal untuk propagator elektron tunggal yang ditulis pada basis ruang nyata. Pada Gambar 2.26, salah satunya dapat dilihat struktur pita dari *graphene* yang diperoleh dari model ikatan kuat sederhana, yang menghasilkan induksi simetri dan pita valensi dengan respek ke energi Fermi (juga disebut titik pengisian secara netral atau titik *dirac*) diatur pada 0 eV. Pita valensi dan konduksi *graphene* diturunkan 6 titik yang terletak pada pojok zona Brillouin, disebut juga lembah K dan K'. Region heksagonal (zona Brillouin) memiliki panjang sisi $4\pi/3a$ dan menggambarkan permukaan Fermi dari *graphene* yang ditunjukkan pada Gambar 2.26 (c). Karena permukaan Fermi dari *graphene* dipadatkan ke zona dimensi 0 yang terdiri dari himpunan berhingga dari 6 titik zona Brillouinnya, *graphene* biasanya disebut material semi logam dengan tanpa tumpukan *layer* /lapisan tunggal atau semikonduktor gap-0. Hal ini mudah untuk melihat bahwa sifat elektronik *graphene* bervariasi dengan pertukaran K dan K', yang berarti bahwa 2 lembah dihubungkan oleh simetri kebalikan waktu. Fenomena fisik yang sangat menarik menjadi jelas ketika percobaan untuk memecah simetri kebalikan waktu ini menunjukkan hasil yang efektif.

Dispersi energi yang rendah dekat lembah menunjukkan bentuk kerucut melingkar, ditunjukkan pada sisipan gambar 2.26 (b), tidak seperti hubungan momentum-energi kuadratik yang dipatuhi oleh elektron tepi pita pada semikonduktor konvensional. Perbandingan hubungan energi linear *graphene* ini dengan dispersi partikel relatif bermassa yang diperoleh dari persamaan Dirac, salah satu yang dapat dilihat bahwa pembawa *n graphene charging* dapat berlaku sebagai Fermi dirac dengan kecepatan Fermi efektif yang 300 x lebih kecil dibanding kecepatan cahaya. Hal ini membuat *graphene* menjadi sebuah sistem yang reliabel untuk mempelajari fenomena elektrodinamik kuantum. Sebuah area investigasi sebelumnya dibatasi untuk investigasi fisik partikel dan kosmologi. Dalam hal ini berbagai kelompok penelitian telah membahas berbagai fenomena yang tidak umum yang diungkapkan oleh material *graphene*, yang dikarakterisasi dari partikel relativistik dirac, misalnya, ketiadaan pengaruh lokalisasi bahkan ketika elemen yang tidak teratur mengambil tempat. Konduktivitas metalik yang kuat bahkan pada batas konsentrasi pembawa 0 secara nominal, dan setengah pengaruh *Hall quantum integer* .

Tambahan fitur pita dapat dipelajari dari spektrum energi *graphene* ketika model yang telah di adopsi melampaui pendekatan ikatan kuat orthogonal sederhana atau formalisme dirac. Teknik yang lebih baik, seperti metode inisio ab, memprediksi bahwa pita anti ikatan ditempatkan pada energi yang lebih tinggi dengan pengaruh ke keberadaan ikatan jika matrik integral yang tumpang tindih adalah nonortogonal. Implementasi yang paling mutakhir untuk skema ikatan yang kuat antara pita π tunggal dengan mempertimbangkan hingga 3 interaksi tetangga terdekat dan elemen yang tumpang tindih dapat menghasilkan deskripsi akurat dari sifat elektronik yang berhubungan dengan perhitungan prinsip utama.

Sifat elektronik yang mengesankan dari *graphene* telah sangat memotivasi komunitas ilmuwan untuk mengejar pemahaman yang lebih baik dari fitur fisik utamanya dengan bonus mengkonversinya kedalam aplikasi teknologi nyata. Bagaimanapun, ketiadaan energi *band-gap* yang besar membatasinya menggunakan perangkat digital. Sehingga, strategi alternatif yang kapabel menginduksi sebuah *band-gap* pada *graphene* yang sedang dicari. Berbagai strategi telah dengan sukses dicoba untuk memodifikasi struktur elektronik

graphene dan termasuk *doping* kimia, interaksi dengan substrat, dan aplikasi gaya mekanik atau bidang listrik/magnetik eksternal. Lapisan *graphene* yang ditumpuk pada bentuk struktur 2 lapis atau grafit juga menawarkan sebuah metode yang menjanjikan untuk manipulasi *band-gap*. Teknik litografi yang mutakhir dikerjakan untuk membuat sampel *graphene* yang lebar kedalam struktur skala nano yang telah ditunjukkan bahwa penahanan lateral dari pembawa muatan dapat bekerja sebagai parameter *gap-tuning* energi. Seperti struktur *graphene* yang kecil diketahui sebagai *graphene nanoribbon* (GNR) dan hal tersebut telah menunjukkan bahwa skala gap energinya berbanding terbalik dengan lebar *section* yang mengikuti dan ditujukan untuk meringkas sifat fisik utama seperti sistem *graphene* yang masih dibatasi. Gambar 2.27 menunjukkan struktur dari *graphene* (Choi, 2012).



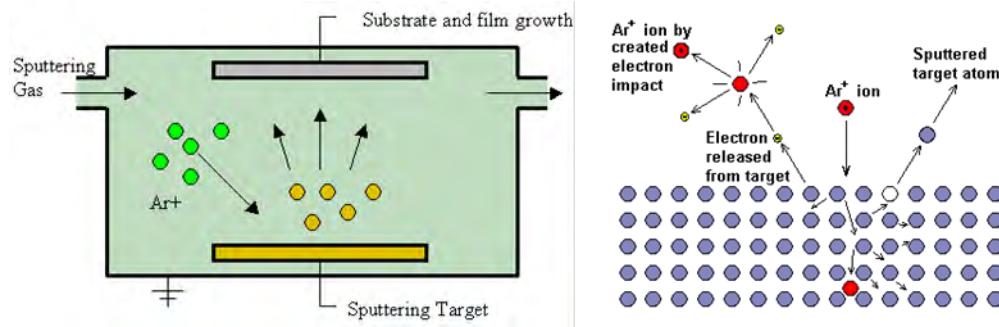
Gambar 2.27 Struktur *graphene* (Choi dan Lee, 2012)

2.11 Material X (X= Au, Pd dan PdAu)

Paladium pada katalis *fuel cell* menarik, karena lebih banyak persebarannya di kerak bumi dibanding Pt (kelimpahan $1,5 \times 10^{-2}$ vs 5×10^{-3} ppm masa, masing-masing), dan lebih murah dibanding Pt. menggantikan Pt dengan Pd akan menurunkan harga elektrode. Sebagai tambahan Pd sangat stabil pada lingkungan *fuel cell* asam dan juga menunjukkan sifat elektrokatalitik yang menarik. Sifat ini menyebabkan Pd dianggap sebagai katalis yang memungkinkan untuk reaksi ini, seperti metanol, etanol dan elektro oksidasi pembentukan asam formiat dimana CO menunjukkan sebagai keracunan medium (Li dkk, 2014).

Au (elektronegativitas $\chi=2.4$) adalah logam transisi yang lebih elektronegatif dibanding Paladium (elektronegativitas $\chi=2.2$), penggabungan Au memiliki pengaruh yang unik pada nanopartikel Pd. Sehingga, bimetalik Pd-Au nanopartikel yang sangat penting sebagai katalis *fuel cell*, khususnya untuk elektro oksidasi metanol (Li dkk, 2014). Au dengan struktur nano yang di support oleh material karbon dapat menjadi cara yang efektif untuk mengurangi kandungan Au dan meningkatkan unjuk kerja elektrokatalitik (Shu dkk, 2015).

2.12 Sputtering



Gambar 2.28 Skema proses *sputter* (Wolf, 1995)

Proses *sputtering* secara fisik, atau *pulverization* jika disebutkan dalam bahasa Perancis, termasuk proses penguapan atom dari permukaan oleh transfer momentum dari tumbukan antara partikel aktif yang berukuran atom. Partikel aktif biasanya ion dari material gas yang dipercepat pada bidang elektrik. Histori deposisi *sputtering* dan *sputter* cukup mahal. Istilah “*Chemical sputtering*” dan

“*electrochemical sputtering*” telah diasosiasikan dengan proses dimana pengeboman dari permukaan target dengan sesuatu yang reaktif menghasilkan sesuatu yang volatil. Proses ini sekarang sering diistilahkan “*reactive plasma sputtering*” (RPE) atau “*reactive ion etching*” dan merupakan hal yang penting pada pola lapisan tipis.

Deposisi *sputter* adalah deposisi partikel yang asalnya dari permukaan (target) yang di *sputter*. Deposisi *sputter* film pertama kali di laporkan oleh Wright pada 1877 dan layak karena secara relatif hanya membutuhkan vakum yang rendah untuk deposisi *sputter*. Edison mematenkan proses deposisi *sputter* untuk pendeposisian emas pada silinder fotografi lilin pada tahun 1904. Deposisi *sputter* tidak secara luas digunakan pada industri hingga kebutuhan berkembang untuk sesuatu yang menghasilkan, stabil, sumber penguapan dengan umur panjang untuk produksi, dan datangnya berbagai macam *magnetron sputtering*. Planar *magnetron sputtering* yang menggunakan bidang magnetik untuk membatasi gerak *secondary electron* dekat permukaan target planar, saat ini konfigurasi *sputtering* yang paling banyak digunakan.

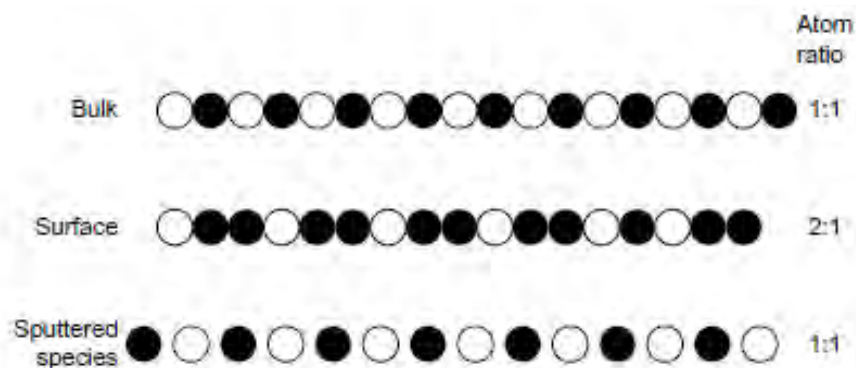
Khususnya, penggunaan istilah deposisi *sputter* hanya mengindikasikan bahwa permukaan yang telah di *sputter* adalah sumber material yang di deposisikan. Pada beberapa kasus, konfigurasi *sputtering* dapat di indikasikan (contoh *ion beam sputtering*, *magnetron sputtering*, *unbalanced magnetron sputtering*, (UBS), HIPPMS, *rf sputtering*, dll). Pada beberapa kasus khusus kondisi *sputtering* bisa diindikasikan, seperti deposisi *sputter* reaktif untuk deposisi lapisan senyawa atau *bias sputtering*, ketika sebuah *bias* diletakkan pada substrat sehingga ada pengeboman ion yang bersama-sama dari pendeposisian film.

Deposisi *sputter* dapat dilakukan pada :

- a. Vakum yang baik ($<10^{-5}$ Torr) menggunakan *ion beam*.
- b. Lingkungan gas tekanan rendah dimana partikel yang di *sputter* dibawa dari target ke substrat tanpa tumbukan fase gas (seperti tekanan kurang dari 5 mTorr), menggunakan plasma sebagai sumber ion.
- c. Tekanan gas yang lebih tinggi dimana tumbukan fase gas dan “*thermalization*” dari terjadinya lontaran partikel akan tetapi tekanannya cukup rendah sehingga

pengintian fase gas tidak menjadi hal yang penting. (contoh tekanan lebih besar dari ± 5 mTorr tetapi kurang dari 50 mTorr).

Deposisi *sputter* dapat digunakan untuk mendepositkan lapisan material senyawa baik menggunakan *sputtering* dari senyawa target atau menggunakan *sputtering* dari elemen target pada tekanan parsial gas reaktif (seperti *reactive sputter deposition*). Pada kebanyakan kasus, deposisi *sputter* material senyawa dari senyawa target menghasilkan hilangnya beberapa material volatil yang lebih banyak (contoh oksigen dari SiO_2) dan kehilangan ini sering terjadi oleh deposisi pada lingkungan yang mengandung tekanan parsial gas reaktif; proses ini bisa disebut “*quasi-reactive sputter deposition*”. Pada *quasi-reactive sputter deposition*, tekanan parsial gas reaktif yang dibutuhkan kurang dari apa yang digunakan untuk deposisi *sputter* reaktif. Gambar 2.29 menunjukkan *sputtering*, lapis demi lapis (Mattox, 2010).



Gambar 2.29 *Sputtering*, layer by layer (Mattox, 2010)

2.13 Sifat Elektrokimia pada Elektrokatalis

Jenis material elektrokatalis yang diaplikasikan pada *fuel cell* tidak memiliki batasan yang jelas. Dimana berbagai peneliti telah berlomba-lomba untuk menggantikan Pt yang memiliki harga mahal dan mudah teracuni gas CO dengan logam lain. Misalnya, (Madhu dkk, 2011) mencoba menggantikan elektrokatalis Pt dengan Pd-Se untuk DMFC. selain menggantikan dengan logam lain, ada juga peneliti yang mencoba memadukan Pt dengan logam lain untuk meningkatkan sifat elektrooksidasinya terhadap metanol serta menurunkan sifat elektrokatalis Pt yang mudah teracuni oleh gas CO. Misalnya, (Yang dkk, 2016) mencoba memadukan Pt dengan Pd dan karbon *nanotube*. Untuk mengurangi logam mulia (Pd, Au, Pt dll) elektrokatalis juga dipadu dengan material karbon, *graphene* oksida, *graphene* dll (Yang dkk, 2016).

Persyaratan umum untuk menjadi elektrokatalis adalah jika suatu material mempunyai sifat elektrokimia yang baik. Pada dasarnya banyak sifat elektrokimia yang dapat dianalisis, misalnya kemampuan untuk mengoksidasi metanol, etanol, dll. Untuk mengetahui kemampuan elektrooksidasi suatu material elektrokatalis, instrument CV digunakan untuk menguji *Electrochemically active surface area* (ECSA). ECSA dapat dihitung melalui pengukuran *charge* yang dikumpulkan selama proses adsorpsi-desorpsi hidrogen dibawah 0 V. Sementara itu rasio arus *forward anodic peak* (I_f) terhadap *backward anodic peak* (I_b) dapat digunakan untuk mengevaluasi toleransi katalis terhadap jenis karbon menengah yang terakumulasi pada permukaan katalis (Yang dkk, 2016).

Forward oxidation peak (I_f) yang berasal dari suatu tahapan langsung dari proses oksidasi metanol, yang menghasilkan karbon menengah yang teradsorpsi oleh katalis (Pd, Pt dll), seperti CO dan CO₂. Pada umumnya CO yang teradsorpsi menyebabkan kerusakan yang sangat serius pada katalis. Sedangkan *backward oxidation peak* (I_b) berasal dari oksidasi CO yang teradsorpsi terhadap CO₂. Sehingga, rendahnya nilai I_b berarti semakin rendahnya kemampuan teracuni oleh gas CO. Rasio I_f terhadap I_b dapat diambil sebagai sebuah rumusan yang penting untuk mengevaluasi toleransi katalis terhadap *CO poisoning*, seperti fraksi pada permukaan katalis yang tidak teracuni oleh gas adsorpsi CO (Hsieh dkk, 2016).

Sebagai tambahan, *equivalent series resistance* (ESR) merupakan penjumlahan dari R_S , R_{CT} dan R_P yang dapat dianggap sebagai estimasi total *inner resistance* dari elektroda. Dimana, R_S adalah resistansi dari larutan elektrolit, R_{CT} adalah kombinasi resistansi *interfacial* dan transfer muatan, dan R_P adalah resistansi pori yang terdistribusi secara ekuivalen (Hsieh dkk, 2016). Sedangkan untuk mengukur stabilitas jangka panjang katalis terhadap oksidasi etanol dapat dianalisis dengan *chronoamperometry* (Yang dkk, 2016).

2.14 Penelitian sebelumnya

Penelitian-penelitian mengenai *fuel cell* dan elektrokatalis yang telah dilakukan oleh peneliti-peneliti sebelumnya adalah :

2.14.1 Paladium sebagai katalis yang di dukung oleh *graphene* oksida dan *graphene*.

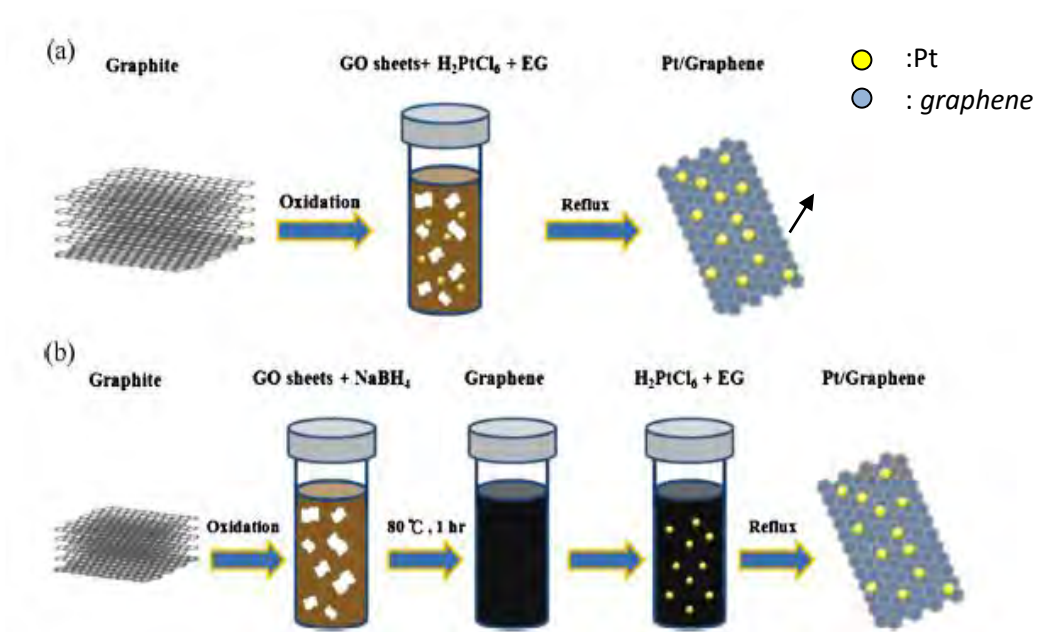
Pada penelitian ini, strategi yang sederhana dan mudah dikembangkan untuk preparasi nanopartikel paduan bimetalik Au-Pd yang terdeposisi homogen disupport oleh *Reduced Graphene Oxide Nanosheet* (RGOs) pada kondisi *solvothermal*. Morfologi, struktur kristal, dan komposisi yang detail dikarakterisasi dengan resolusi tinggi oleh mikroskop elektron transmisi (TEM), difraksi sinar-X (XRD), dan spektroskopi sinar-X foto elektron (XPS). Nano komposit yang telah dianalisa menunjukkan peningkatan kemampuan katalitik, stabilitas yang lebih baik, dan toleransi metanol yang baik terhadap reaksi reduksi oksigen (ORR) pada media alkalin, dibandingkan dengan katalis komersial Pd hitam dan RGOs (yang direduksi dengan NaBH_4). Sebagai tambahan untuk metode pengembangan Pd dapat diterapkan untuk sintesis elektrokatalis bimetalik yang lain jika morfologinya dikontrol (Jing-jing dkk, 2014).

Katalis Pd yang disupport oleh *Graphene* (Pd / *graphene*) disintesis menggunakan oksida *graphene* dan garam Pd sebagai prekursor; sehingga kedua nanopartikel Pd dan *graphene* oksida direduksi secara kimia oleh *hydrazinehydrate*. Analisis *Transmission Electron Microscope* (TEM) dan *X-Ray Diffraction* (XRD) pada serbuk menunjukkan nano partikel Pd, yang disupport pada permukaan lembaran *graphene* dengan ukuran 2-6 nm. Aktivitas katalitik dari Pd / *graphene* di investigasi melalui reaksi *heck coupling* dengan substrat aril

yang diaktifkan dan tidak diaktifkan. Komposit Pd / *graphene* menunjukkan aktivitas katalitik yang sangat baik, Pd *leaching* yang rendah, dan kemampuan untuk digunakan kembali setidaknya lima kali daur ulang untuk reaksi *heck coupling* karbon-karbon . Hasil eksperimen menunjukkan lembaran *graphene* sangat berpengaruh untuk katalis Pd ligan bebas (Wang dkk, 2015).

2.14.2 Studi Katalis Pt Pada *Graphene* Dan Aplikasinya Untuk *Fuel cell*.

Pada penelitian ini nanopartikel platina pada *graphene* (PtNPs / GN) yang disintesis dari grafit oksida melalui dua rute (rute pertama dan kedua). Untuk rute pertama, menggunakan massa *graphene* oksida (GO) dan variabel berat H₂. PtCl₆. 6H₂O yang sudah ditentukan dimasukkan pada etilen glikol untuk refluks pada temperatur 120 dan 150 °C masing – masing selama 3, 6, 12 dan 24 jam. Untuk rute kedua, langkah pertama adalah reduksi lapisan GO oleh natrium tetrahidridborat untuk mendapatkan *graphene*. Kemudian, *graphene* dideposisikan dengan partikel Pt yang dimasukkan ke dalam etilen glikol untuk refluks pada 120, 150 dan 180 °C selama 3, 6, 12 dan 24 jam. Hasil penelitian menunjukkan bahwa partikel elektroda katalis (elektrokatalis) Pt memiliki ukuran yang lebih kecil dan distribusi yang lebih baik di permukaan *graphene* pada kondisi reduksi berikut: dua langkah reduksi, waktu reaksi 12 jam, suhu reaksi 150 °C dan H₂PtCl₆ 1 g/L. Komposit PtNPs/GN ini menunjukkan luas permukaan elektrokimia aktif yang superior dan toleransi yang tinggi terhadap racun oksidasi metanol dibandingkan Vulcan XC-72-Pt dengan kandungan Pt yang sama. Hal ini menunjukkan bahwa PtNPs/GN dapat digunakan sebagai support elektrokatalis yang menjanjikan untuk *direct methanol fuel cell* (Hsieh dkk, 2015).



Gambar 2.30 Katalis Pt disupport oleh *graphene* (a)rute step 1 (b)rute step 2 (Hsieh dkk, 2015)

2.14.3 Katalis Bimetal Dan Trimetal Pt-Sn/C, Pt-Ir/C, Pt-Ir-Sn/C untuk Elektro-Oksidasi Etanol Pada Direct Ethanol Fuel cell.

Pada penelitian ini, elektrokatalis kombinasi bimetal dan trimetal Pt, Ir, Sn disintesis dengan metode reduksi impregnasi karbon Vulcan XC-72 untuk meningkatkan elektrooksidasi etanol pada *direct ethanol fuel cell*. Elektrokatalis yang sudah disintesis dikarakterisasi dengan metode analisis *Scanning Electron Microscope* (SEM), *Transmission Electron Microscope* (TEM), *Energy Dispersion X-Ray* (EDX) dan *X-Ray Diffraction* (XRD). Analisis XRD dan TEM menunjukkan bahwa katalis yang sudah disintesis memiliki range ukuran nano (6-10 nm). Hal ini menunjukkan bahwa parameter kisi Pt menurun seiring dengan penambahan Ir, dan meningkat dengan penambahan Sn pada katalis Pt-Ir-Sn/C. Aktivitas elektrokatalitik diuji dengan metode *Cyclic Voltammetry* (CV), *Linear Sweep Voltametry* (LSV) dan *Chronoamperometry* (CA) yang menunjukkan bahwa penambahan sejumlah kecil Ir pada elektrokatalis Pt-Sn/C meningkatkan aktivitas terhadap oksidasi etanol pada elektrokatalis Pt-Sn/C (20% berat Pt dan 20% berat Sn). *Single Test Direct Ethanol Fuel cell* (DEFC) dilakukan pada temperatur 90 °C, tekanan 1 bar dengan massa katalis 1 mg/cm² dan 2 M etanol

sebagai anoda tumbal yang menunjukkan peningkatan aktivitas katalitik dalam urutan sebagai berikut: Pt-Ir-Sn/C (20% Pt, 5% dan 15% Ir Sn wt) > Pt-Ir-Sn/C (20% Pt, 10% dan 10% Ir Sn wt)> Pt-Sn/C (20% Pt dan 20% Sn wt)> Pt-Ir-Sn/C (10% Pt, 15% dan 15% Ir Sn wt)> Pt-Ir/C (20% Pt dan 20% Ir wt)> Pt/C (40% Pt wt). Sampel Pt-Ir-Sn/C (20% Pt, 5% dan 15% Ir Sn wt) menunjuk kinerja tertinggi di antara semua katalis yang disintesis dengan kerapatan daya 29 mW/cm² pada DEFC yang beroperasi pada temperatur 90 °C (Tayal dkk, 2011).

Tabel 2.2 Perbedaan kombinasi katalis bimetal dan trimetal yang disiapkan dengan komposisi metal yang berbeda.

Katalis yang disiapkan	Persentase berat			
	Pt	Ir	Sn	C
Pt-Ir/C	20	20	-	60
Pt-Sn/C	20	-	20	60
Pt-Ir-Sn/C	20	10	10	60
Pt-Ir-Sn/C	10	15	15	60
Pt-Ir-Sn/C	20	5	15	60

Sumber : Tayal dkk, 2011

2.14.4 Struktur Nano Katalis Pt Dan Pt-Sn yang di Support Karbon *Nanotube* Teroksidasi Untuk Elektrooksidasi Etanol Dan Etilen Glikol.

Katalis Pt dan Pt-Sn yang disupport oleh karbon *nanotube* yang telah teroksidasi disusun dan diuji oleh potensiostat untuk mengetahui elektrooksidasi etanol dan etilen glikol pada larutan asam sulfat. Material dengan struktur nano dikarakterisasi melalui analisis SEM, TEM, EDX dan XRD. Nanopartikel logam dengan ukuran kecil (4-6 nm) membentuk 3-D dengan struktur nanoagglomerat (25-100 nm) yang didistribusikan ke substrat karbon. Hasil XRD menunjukkan bahwa elektrokatalis bimetal terdiri dari material Pt fase tunggal, dimana menunjukkan pembentukan larutan padat di seluruh rentang komposisi. Kandungan timah pada paduan yaitu antara 10 dan 40 atomik %. Pengukuran CV dan *chronoamperometry* pada suhu kamar menunjukkan bahwa pada potensial

dibawah 0,5 V, katalis bimetal dengan 40 atomik % timah menunjukkan aktivitas tertinggi untuk oksidasi etanol dan etilen glikol, sedangkan pada potensial di atas 0,5 V, paduan dengan 25 atomik % timah menunjukkan kinerja yang lebih baik. Perilaku ini dapat dijelaskan oleh efek sinergis antara media oksidasi alkohol melalui jenis yang mengandung oksigen teradsorpsi pada atom timah, perubahan struktur elektronik atom platina yang menurunkan adsorpsi CO dan intermediet, dan ukuran pasangan atom platina yang memenuhi syarat. Selain itu, peningkatan parameter kisi dan adanya batas butir dapat meningkatkan adsorpsi alkohol dan mendukung pemecahan ikatan C-C (Sieben dkk, 2011).

2.14.5 Efek Penambahan Rений Untuk Katalis Anoda Berbasis Platina Pada Elektro-Oksidasi Etanol pada Direct Ethanol *Fuel cell* (DEFC).

Pemecahan ikatan C-C pada temperatur rendah yang benar-benar mengoksidasi etanol pada *direct ethanol fuel cell* (DEFC) adalah faktor pembatas untuk pengembangan DEFC sebagai sumber alternatif listrik dalam peralatan elektronik portabel. Katalis berbasis Pt biner dan terner dengan penambahan Re, katalis Pt-Re/C (20:20), Pt-Sn/C (20:20), Pt-Re-Sn/C (20:10:10) dan Pt-Re-Sn/C (20: 05:15) disintesis dari prekursor melalui metode reduksi koimpregnasi untuk menganalisis elektrooksidasi etanol di DEFC. Elektrokatalis dikarakterisasi dengan *Microscope Electron Transmission* (TEM), mikroskop elektron, *Energy Dispersive X-Ray* (EDX) dan *X-Ray Diffraction* (XRD) yang menunjukkan formasi yang telah dijelaskan pada katalis bimetal dan trimetal dengan ukuran berkisar 6-16 nm. Analisis elektrokimia dengan *cyclic voltammetry*, *linier sweep voltammetry* dan *chronoamperometry* menunjukkan bahwa Pt-Re-Sn/C (20: 5: 15) memberikan kerapatan arus lebih tinggi dibandingkan dengan Pt-Re/C (20:20) dan Pt-Sn/C (20:20). Penambahan Re untuk Pt-Sn/C dilakukan secara kondusif untuk elektrooksidasi etanol pada DEFC. Densitas daya diperoleh dengan menggunakan Pt-Re-Sn/C (20% Pt, 5% Re, 15% Sn berat) (30,5 mW / cm²) sebagai katalis anoda pada DEFC, lebih tinggi dari itu untuk Pt-Re-Sn/C (20% Pt, 10% Re, 10% Sn berat) (19,8 mW / cm²), Pt-Sn/C (20% Pt, 20% Sn berat) (22,4 mW / cm²) dan Pt-Re/C (20% Pt, 20% Re berat) (9,8 mW / cm²) pada 100 °C, 1

bar, dengan katalis *loading* 2 mg/cm² dan 5 M etanol sebagai anoda yang tumbal(Tayal dkk, 2012)

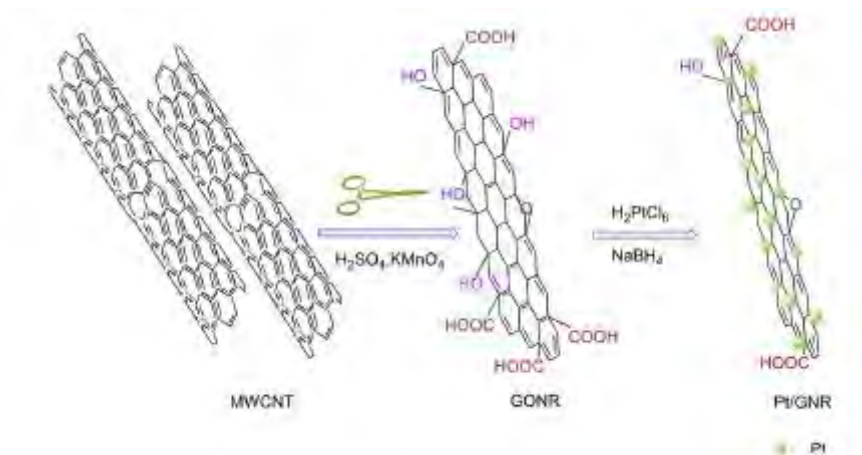
Tabel 2.3 Perbedaan kombinasi katalis bimetal dan trimetal yang disiapkan dengan komposisi metal yang berbeda.

Katalis yang telah di siapkan	Persentase berat			
	Pt	Re	Sn	C
Pt/C	40	-	-	60
Pt-Re/C	20	20	-	60
Pt-Sn/C	20	-	20	60
Pt-Re-Sn/C	20	10	10	60
Pt-Re-Sn/C	20	5	15	60

Sumber : Tayal dkk, 2014

2.14.6 Graphene Nanoribbon Sebagai Material Pendukung Terbaru Untuk Elektrokatalis Fuel cell Dengan Performance Tinggi.

Graphene Nanoribbons (GNRs) pertama kali digunakan sebagai *support material* yang baru untuk katalis platina nanopartikel (NP) berbasis elektrooksidasi metanol. Setelah *nanotube multiwall karbon* (MWCNTs) dioksidasi dan dipotong, *Graphene Oxide Nanoribbon* (GONRs) yang sangat dispersif diperoleh, di mana ion logam seperti PtCl₆²⁻ secara homogen bias dideposisikan. Katalis hibrid GNRs yang disupport oleh Pt NPs (Pt / GNR) dengan sederhana disintesis lebih lanjut melalui *in-situ chemical co-reduction*, dengan distribusi homogen dari Pt NPs (2-3 nm) pada *nanoribbons*. Dibandingkan dengan katalis Pt/MWCNT dan Pt/XC72R komersial, hibrida Pt/GNR menunjukkan luas permukaan elektrokimia aktif yang jauh lebih besar, stabilitas elektrokimia yang lebih tinggi, dan toleransi CO yang lebih baik terhadap elektrooksidasi metanol. Oleh karena itu, GNR adalah alternatif *material support* dua dimensi yang menjanjikan untuk elektrokatalis pada *direct methanol fuel cell* (Wang dkk, 2013).

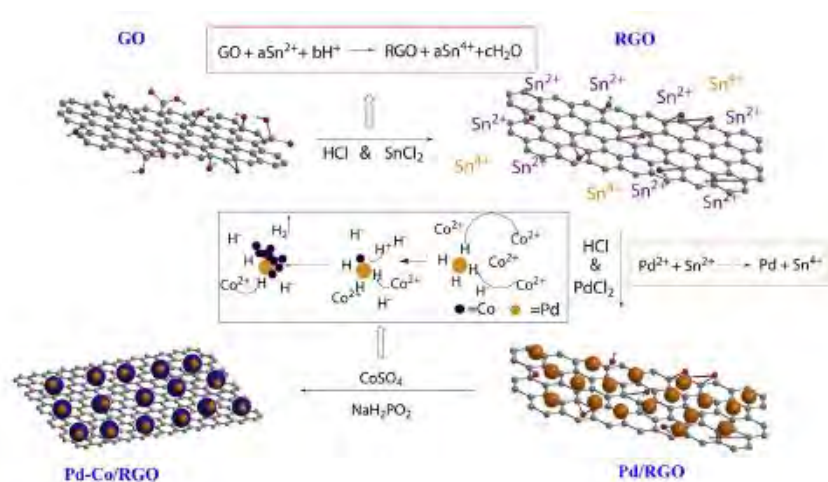


Gambar 2.31 Rute sintesis untuk *hybrid Pt/GNR* (1) *cutting* dan *unzipping* MWCNTs untuk menghasilkan GONRs (2) Formasi hibrida Pt /GNR melalui reduksi in situ (Wang dkk, 2013)

2.14.7 Kinerja Sintesis Dan Elektrokatalitik Oksidasi Alkohol pada Nanopartikel Bimetal Pd- Co yang disupport Nanopartikel Bimetal Pd- Co.

Bimetal nanopartikel Magnetik Pd-Co disupport pada lembaran *Reduced graphene Oxide* (Pd-Co/RGO) dengan kinerja elektrokatalitik sangat baik yang telah disintesis oleh metode reduksi yang cepat, menggunakan natrium hipofosfit sebagai reduktor. Beban masa dan fase kristal kobalt pada hibrid Pd-Co/RGO memiliki variasi untuk jumlah inisial garam kobalt dan agen reduktor. Gambar mikroskop elektron transmisi (TEM) menunjukkan bahwa ukuran nanopartikel bimetal Pd-Co sekitar 10-13 nm dan tanpa aglomerasi yang signifikan. Pada saat yang sama masa Pd pada *graphene* dan densitas puncak anodik progresif pada variasi katalis Pd-Co/RGO mengalami penurunan sekitar 25%, bila dibandingkan dengan nanopartikel Pd murni yang disupport oleh *graphene* oksida yang telah direduksi untuk oksidasi metanol dan etanol. Namun, pengujian *chronoamperometry* menegaskan bahwa stabilitas itu meningkat hingga 240% dan 225% untuk masing-masing oksidasi metanol dan oksidasi etanol. Hal ini memberikan hipotesis bahwa lapisan Co pada Pd yang secara parsial menutup area Pd sehingga mengorbankan sebagian kecil dari aktivitas katalis, tetapi menyisakan Pd yang lebih aktif dan dengan demikian meningkatkan kinetika oksidasi alkohol dan toleransi terhadap keracunan intermediet. Kinerja katalitik

dari hibrida Pd-Co/RGO untuk oksidasi alkohol terutama dipengaruhi oleh interaksi antara Pd, Co, dan *graphene* (Wang dkk, 2014).



Gambar 2.32 Prosedur sintesis Pd-Co /RGO (Wang dkk, 2014)

2.14.8 Nanopartikel Pd yang disupport pada *Graphene Aerogel* Tiga Dimensi sebagai Katalis dengan Efisiensi Tinggi untuk Elektrooksidasi Metanol.

Nanopartikel Pd yang disupport pada *graphene aerogel* 3D (Pd/3DGA) di dispersikan dengan baik dimana berhasil disintesis melalui metode hidrotermal yang sederhana dan efisien tanpa surfaktan dan *template*. Morfologi dan struktur nanokomposit Pd/3DGA yang telah dipersikan di investigasi menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan *X-ray Diffraction* (XRD). SEM menunjukkan bahwa nanopartikel Pd dengan diameter rata-rata yang kecil dan distribusi ukuran yang sempit secara seragam di depositkan pada permukaan *graphene aerogel* 3D yang di rangkai sendiri. *Raman spectra* menunjukkan bahwa sifat permukaan 3DGA dan interaksinya dengan nanopartikel metalik. Eksperimen *Cyclic voltammetry* (CV) dan *chronoamperometric* (CA) menunjukkan lebih lanjut aktivitas katalitik superiornya dan stabilitas terhadap elektrooksidasi metanol pada media alkalin, pembuatannya menjanjikan katalis anodik untuk *direct alkaline alcohol fuel cell* (DAAFC) (Liu dkk, 2015).

2.14.9 Sintesis Komposit Pd/C dari PdCl₂ dan β-CD sebagai Katalis pada Oksidasi Metanol.

Nanopartikel Pd yang disupport karbon di sintesis secara simultan dan menghasilkan material katalis yang diaplikasikan pada oksidasi metanol. PdCl₂ dan β-siklodekstrin (CD) digunakan sebagai material bahan baku. β-CD pada reaksi ini digunakan sebagai reagen pengompleks dan sumber karbon. Ketika Pd²⁺ direduksi untuk Pd oleh perlakuan reduksi hidrogen, pengaruh kompleks β-CD menyebabkan agregasi Pd nanopartikel. Elektrooksidasi metanol pada media alkalin telah dianalisa. Katalis yang diberi perlakuan pada 673 K menunjukkan aktivitas elektrokatalitik dan stabilitas yang lebih baik untuk oksidasi metanol dibandingkan 773 K dan 1073 K dan elektrokatalis Pt/C komersial, yang bisa diatribusikan pada dispersi tinggi Pd nanopartikel dan *special frame* dan sifat pengompleksan (Zhang dkk, 2014).

2.14.10 Penggabungan *Hybrid* secara erat antara Grafitik Karbon Nitrida *Nanoflakelets* dengan *Graphene* Oksida yang direduksi untuk mensupport Pd Nanopartikel : Nanokatalis Stabil dengan Aktivitas Katalitik yang Tinggi terhadap Asam Formiat dan Elektrooksidasi Metanol

Material support terbaru yang kaya akan nitrogen (CNNF-G) mengandung grafitik karbon nitrida (g-C₃N₄) *nanoflakelet* (CNNF) dan *graphene* oksida yang direduksi (rGO), yang didesain dan dipabrikasi untuk *loading* Pd nanopartikel. Karakterisasi struktur mengindikasikan bahwa CNNF yang dibentuk melalui *splitting decomposition* dari polimer g-C₃N₄ terhadap rGO pada temperatur yang lebih tinggi dan hasil CNNF adalah penggabungan erat terhadap lembaran rGO. CNNF dapat menghasilkan area tepi yang terekspos dan jenis nitrogen yang aktif untuk dispersi yang baik dari Pd nanopartikel. Sehingga ditemukan bahwa Pd nanopartikel dengan diameter rata-rata yang homogen 3,92 nm terdispersi pada lembaran CNNF-G. Perhitungan DFT mengungkapkan bahwa CNNF dapat menjebak atom Pd dan dengan demikian bertindak sebagai area pengintian Pd yang mana atom Pd cenderung terakumulasi untuk membentuk klaster-klaster Pd. Nanokatalis Pd-CNNF-G menunjukkan aktivitas elektrokatalitik yang sangat baik untuk kedua reaksi asam formiat dan oksidasi metanol, termasuk luas permukaan

aktif secara elektrokimia (ECSA) yang tinggi, densitas arus puncak depan yang tinggi secara signifikan, stabilitas dan ketahanan yang dapat diandalkan jauh melebihi Pd-*graphene* dan katalis Pd yang disupport karbon komersial yang teraktivasi atau Pd-karbon nanotube. Seperti, nanokatalis Pd/CNNF-G stabil yang mungkin membawa kesempatan desain baru untuk *direct acid fuel cell* (DFAFC) dengan *performance* baik dan *direct methanol fuel cell* (DMFC) di masa depan (Zhang dkk, 2016).

2.14.11 Elektrooksidasi Metanol pada Katalis SnO₂ Disupport oleh Pd/MWCNTs pada Larutan Alkalin

Elektrooksidasi metanol (MEO) pada katalis Pd-SnO₂/MWCNT disintesis melalui metode reduksi gelombang mikro dengan poliol yang telah telah diteliti. Performa struktur, morfologi dan elektrokatalitik dari katalis dikarakterisasi dengan XRD, TEM dan CV. Hasilnya menunjukkan bahwa tingginya Pd nanopartikel (PdNP) yang terdispersi dengan range distribusi ukuran yang kecil pada MWCNT telah berhasil disintesis. Aktivitas katalis Pd-SnO₂/MWCNT untuk MEO meningkat hingga 778,8 mA/mg Pd pada larutan KOH 0,1 M yang mengandung 1 M metanol yang signifikan lebih tinggi dari Pd/C (414,2 mA/mg Pd) atau Pd-SnO₂/C (566,7 mA/mg Pd). Ditambah lagi, MEO pada elektroda Pd-SnO₂/MWCNT menunjukkan perilaku irreversibel pada kontrol difusi yang memberikan perubahan densitas arus (j^0) $3,76 \times 10^{-4} \text{ A cm}^{-2}$ dan kemiringan tafel 149 mV dec^{-1} ($\alpha=0,56$) pada 25° C , yang mengindikasikan bahwa katalis Pd-SnO₂/MWCNT memiliki unjuk kerja elektrokatalitik tinggi untuk MEO di media alkalin (Ren dkk, 2014).

2.14.12 Deposisi Elektrokimia *single step* pada Nano Komposit Au-*Graphene* yang Berperforma Tinggi untuk Mendeteksi Glukosa Non Enzimatik.

Pada penelitian ini, nano komposit (nano partikel Au yang didepositkan pada *graphene*, dinotasikan sebagai Au-gra) tiga dimensi (3D) kualitas tinggi di sintesis oleh pendekatan elektrokimia sederhana, yang direduksi ion Au dan *graphene* oksida yang dilakukan dengan proses satu tahap. Hasilnya hibrida dikarakterisasi menggunakan *field emission scanning electron microscopy* (FE-SEM), *raman*

spectroscopy, *x-ray diffraction* (XRD) dan *X-ray photoelectron spectroscopy* (XPS). Ditemukan bahwa nano partikel Au memiliki support yang sangat baik pada permukaan *graphene* dan secara seragam nano komposit di modifikasi pada elektroda dengan struktur berpori 3D. Berdasarkan pada hasil *cyclic voltammetry* dan *amperometric*, Au-gra dikatalisasi secara efisien dari oksidasi glukosa pada media metral (0.1 PBS, pH 7.4) dan menunjukkan waktu respon yang sangat cepat (sekitar 3 s), *broad linear range* (0.1-16 mM), stabilitas yang baik dan sensitivitas diestimasi $4.56 \mu\text{A}/\text{cm}^2 \text{ mM}$ ($R=0.992$, $285.8 \mu\text{A}/\text{cm}^2 \text{ mM}$ vs luas geometrik). Percobaan elektrokimia menunjukkan potensial deteksi yang rendah secara relatif (contoh 0 V), dibawah pengaruh oksidasi dari kebanyakan jenis *interfering* yang secara efektif dapat dibatasi. Hasil ini mengindikasikan potensial yang besar dari Au-gra pada pembuatan sensor glukosa non enzimatik yang terbaru dengan performa tinggi (Shu dkk, 2015).

Penelitian sebelumnya sudah mengembangkan berbagai macam material, misalnya *graphene* untuk diaplikasikan pada elektrokatalis perangkat *fuel cell*. Namun pada umumnya elektrokatalis tersebut tetap disupport oleh Pt, karena Pt dapat mengoksidasi metanol dengan sangat baik. Dibalik tingginya kualitas Pt sebagai katalis, Pt juga memiliki kekurangan yaitu harganya yang mahal dan mudah teracuni oleh gas CO. Sehingga beberapa peneliti banyak mencoba menggantikan logam Pt dengan materil lain, yaitu Pd, Au, *graphene*, kobalt, rhodium, nikel, dll. Atau juga mencoba mengkombinasikan material Pt dengan material lain dengan harapan agar dapat menaikkan toleransinya terhadap gas CO.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB 3

METODE PENELITIAN

3.1 Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah :

1. Serbuk Grafit : 50 gram
2. *Carbon cloth*
 - Spesifikasi :
 - Berat : 200 gr/m²
 - Tebal : 0,3 mm
 - Produksi : Taiwan
 - sifat : material konduktif
3. Larutan Asam klorida 37 % (HCl) (SAP Chemical)
4. Serbuk Natrium Nitrat (NaNO₃) (SAP Chemical)
5. Serbuk Kalium permanganat (KMnO₄) (SAP chemical)
6. Larutan Asam sulfat konsentrasi 98 % (H₂SO₄) (SAP Chemical)
7. *Aquades*/air suling (H₂O)
8. Larutan Hidrogen Peroksida (H₂O₂) (SAP Chemical)
9. Metanol (SAP Chemical)
10. Serbuk *Zinc* (Zn)
11. Logam emas (Au) dan paladium (Pd)
12. Serbuk KOH 120 gram (SAP Chemical)
13. Batang karbon
14. Kabel *shrinkage*
15. Lem epoksi
16. Tabung dirham

3.2 Alat

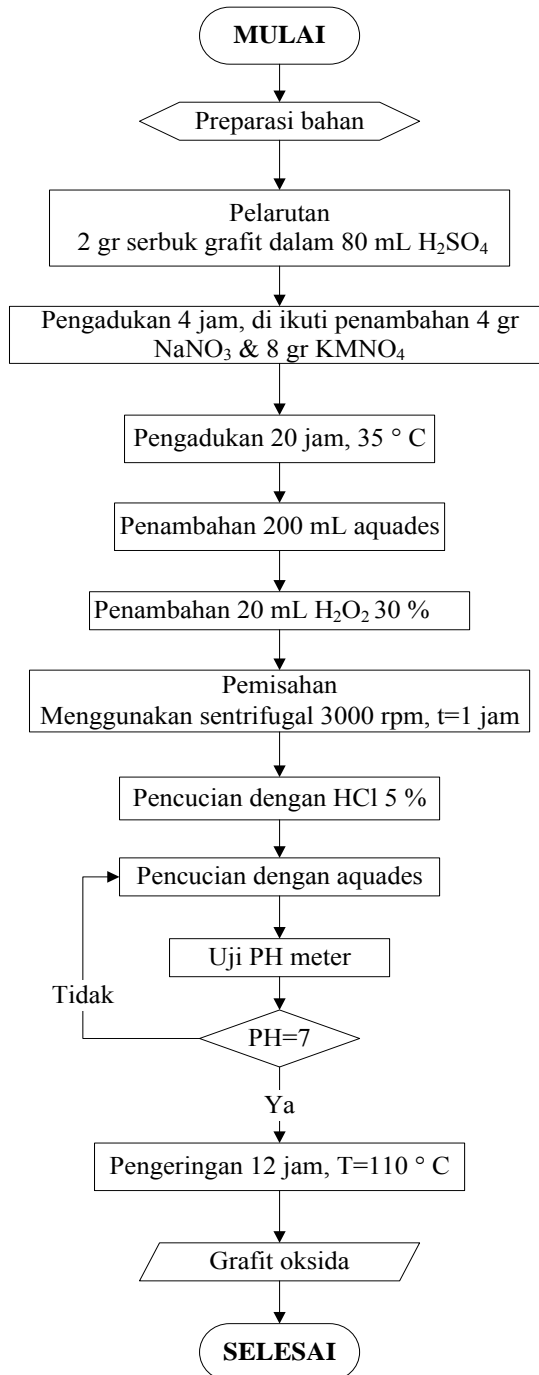
Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah :

1. Neraca analitik dari Mettler Toledo
Alat digunakan untuk menimbang masa bahan yang akan digunakan untuk sintesis, Contohnya serbuk grafit, NaNO_3 , KMnO_4 , serbuk Zn.
2. *Hot Plate with Magnetic Stirrer* dari *Thermo Scientific* untuk pengadukan pada proses sintesis grafit oksida, *graphene* oksida dan *graphene*.
3. *Ultrasonic Cleaners*
Ultrasonic cleaner dari Krisbow untuk memecah grafit oksida menjadi *graphene* oksida dan mendeposisikan *graphene* oksida dan *graphene* pada *carbon cloth*.
4. *Autoclave* buatan sendiri untuk proses hidrotermal dalam proses sintesis *graphene* dan *graphene* oksida.
5. *Furnace* dari *Thermolyne* untuk proses pemanasan seperti proses pengeringan pada sintesis grafit oksida dan hidrotermal pada sintesis *graphene* dan *graphene* oksida.
6. *Physical Vapour Deposition Instrument*
Alat yang digunakan untuk mensputter emas (Au) pada permukaan sampel *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene*.
7. Instrumen karakterisasi material yang digunakan adalah
 - a. *X-Ray Diffraction* (XRD) dari PANalytical untuk mengkarakterisasi senyawa kimia dan struktur kristal dari material grafit, grafit oksida, *graphene* dan *graphene* oksida.
 - b. *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dari Fei INSPECT S50 untuk mengetahui morfologi dan ukuran partikel dari spesimen.
 - c. Instrumen *Cyclic Voltammetry*(CV) untuk mengetahui luas permukaan elektrokimia aktif dan kemampuan mengoksidasi metanol dari spesimen.

3.3 Diagram Alir Penelitian

Diagram alir dari sintesis elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X.

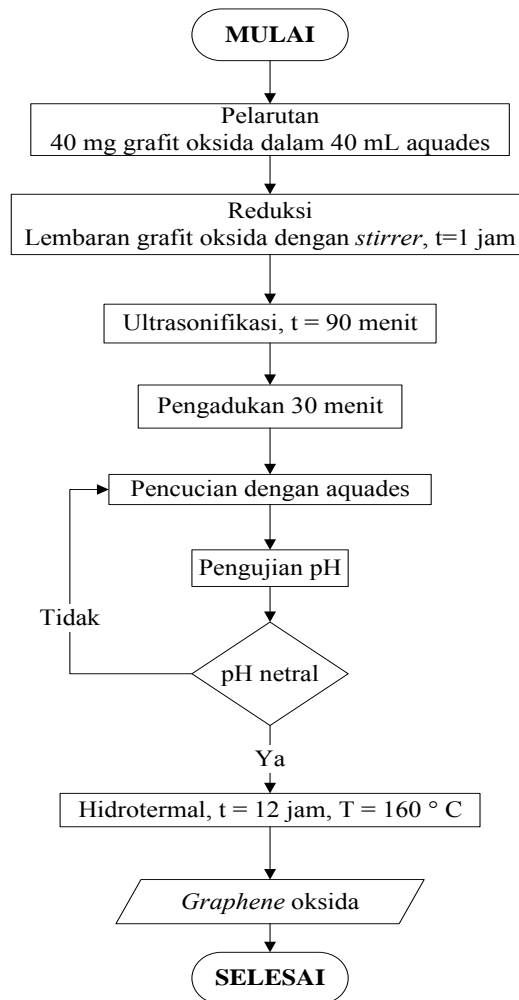
3.3.1 Diagram Alir Pembentukan grafit oksida ditunjukkan pada Gambar 3.1



Gambar 3.1 Diagram alir sintesis grafit oksida

3.3.2 Pembentukan *Graphene* Oksida Dari Grafit Oksida

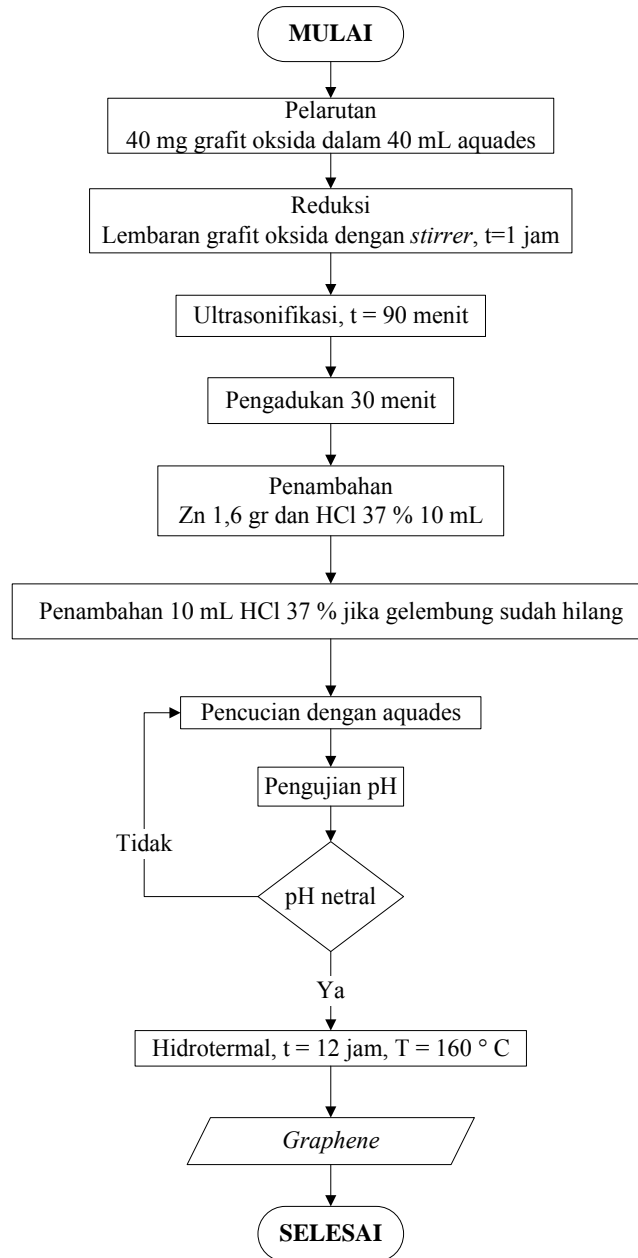
Sintesis *graphene* oksida ditunjukkan oleh Gambar 3.2 yang dilakukan dengan material grafit oksida.



Gambar 3.2 Diagram alir sintesis *graphene* oksida

3.3.3 Pembentukan *Graphene* Dari Grafit Oksida

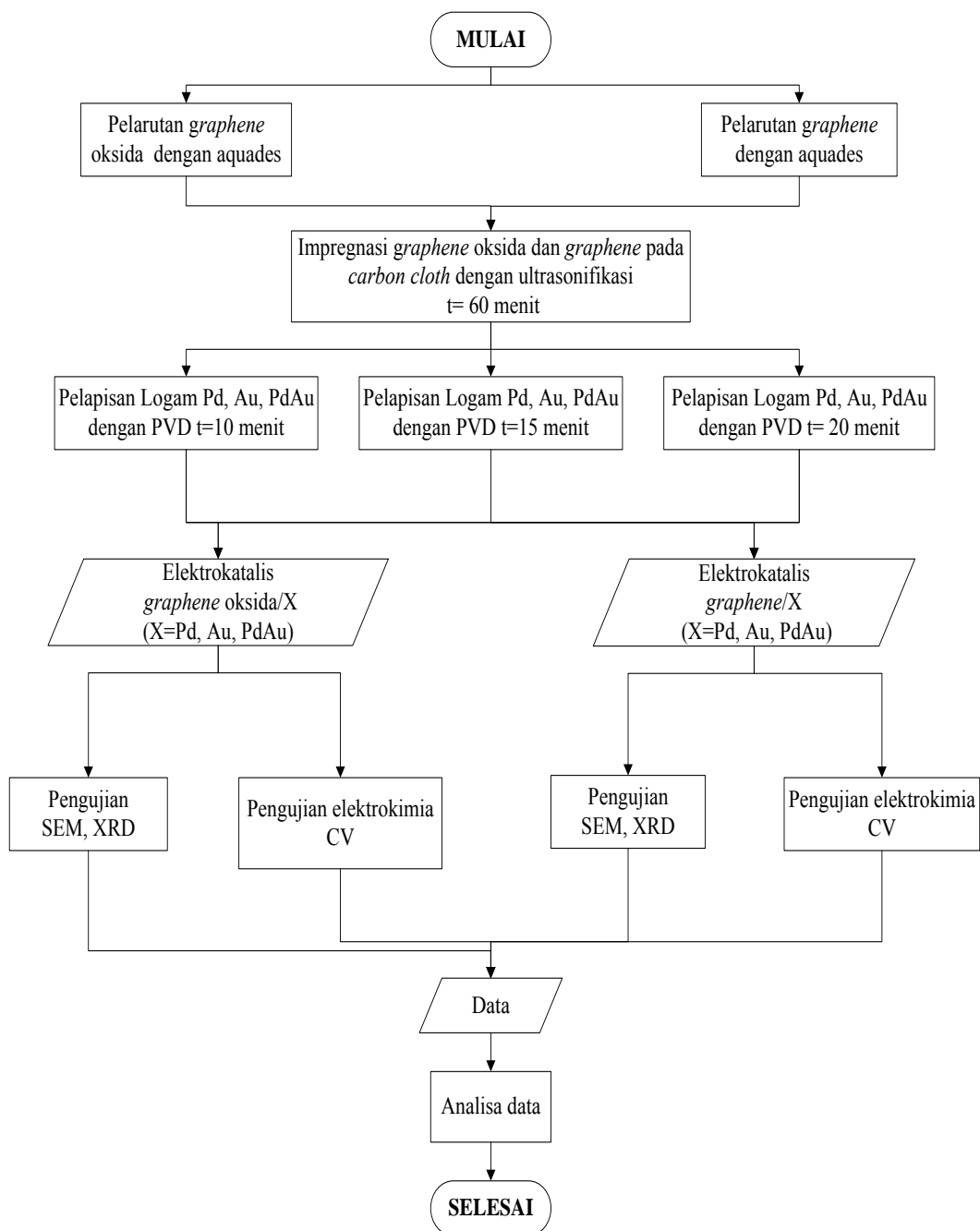
Sintesis *graphene* ditunjukkan pada Gambar 3.3



Gambar 3.3 Diagram alir sintesis *graphene*

3.3.4 Sintesis Elektrokatalis *Graphene* Oksida/X dan *Graphene*/X

Sintesis elektrokatalis ditunjukkan pada Gambar 3.4, proses impregnasi *graphene* pada *carbon cloth* menggunakan ultrasonik, sedangkan pelapisan menggunakan logam X (X= Au, Pd dan PdAu) dilakukan menggunakan *physical vapour deposition* (PVD) dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.



Gambar 3.4 Diagram alir sintesis elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X (X=Au, Pd dan PdAu).

3.4 Prosedur Penelitian

3.4.1 Sintesis Grafit Oksida Dari Grafit

Grafit dengan massa 2 gram dicampur dengan 80 mL asam sulfat 98 %, diaduk sebentar agar larut. Kemudian di *stiring* selama 4 jam, dengan penambahan 4 gram NaNO_3 dan 8 KMnO_4 secara bergantian. Temperatur dijaga konstan saat pengadukan dengan menempatkan spesimen pada kotak yang sudah diberi es batu (*icebath*).



Gambar 3.5 Proses sintesis grafit oksida

Tahapan selanjutnya adalah pengadukan selama 20 jam dan temperatur diatur 35°C menggunakan *magnetic stirrer*, gambar dapat dilihat pada Gambar 3.5. Kemudian dilakukan penambahan *aquades* 200 mL. Setelah diaduk 24 jam, H_2O_2 kadar 30% 20 mL ditambahkan pada larutan sehingga larutan akan berubah menjadi warna kuning. Spesimen di aduk 30 menit lagi sebelum dipindahkan dalam tabung tertutup dan diputar menggunakan mesin sentrifugal selama 1 jam dengan kecepatan 3000 rpm untuk memisahkan endapan dan cairan. Setelah itu larutan akan terpecah menjadi 2 yaitu endapan kuning dan cairan berwarna bening, endapan diambil dan diletakkan pada gelas *beaker*. Endapan di cuci dengan HCl 5 %, dan dicuci dengan *aquades* hingga berubah warna dari kuning menjadi hitam dan pH netral ($\text{pH}=7$). Endapan di titrasi dengan BaCl_2 , jika endapan berwarna putih maka harus diulangi dengan mencuci menggunakan *aquades* lagi. Jika sudah tidak ada endapan putih maka dapat dilakukan pengujian pH. Jika hasil pengujian pH tidak netral harus diulangi ke proses pencucian dengan *aquades*,

namun jika pH sudah netral maka dapat dilakukan proses pengeringan selama 12 jam temperatur 110 °C, proses pengeringan ditunjukkan pada Gambar 3.6. Setelah dikeringkan, spesimen sudah menjadi grafit oksida yang berbentuk lembaran.



Gambar 3.6 Proses pencucian dan pengeringan hingga terbentuk lembaran grafit oksida.

3.4.2 Sintesis *Graphene* Oksida Dari Grafit Oksida

40 mg lembaran grafit oksida ditambah 40 mL *aquades* di reduksi ukurannya menggunakan *magnetic stirrer* hingga halus, setelah halus di ultrasonifikasi selama 90 menit dan di aduk menggunakan *magnetic stirrer* 30 menit agar homogen. Lalu di cuci menggunakan *aquades* hingga pH netral, jika pH sudah netral dapat di hidrotermal selama 12 jam dengan temperatur 160 °C. Setelah proses ini selesai hasilnya adalah *graphene* oksida. Alat ultrasonik dan proses pencucian yang dilakukan untuk mensintesis *graphene* oksida dan *graphene* dapat dilihat pada Gambar 3.7.



Gambar 3.7 proses sintesis *graphene* oksida dan *graphene* dari grafit oksida

3.4.3 Sintesis *Graphene* Dari Grafit Oksida

40 mg lembaran grafit oksida ditambah 40 mL *aquades* di reduksi ukurannya menggunakan *magnetic stirrer* hingga halus, setelah halus di ultrasonifikasi selama 90 menit. Lalu diaduk 30 menit dengan *magnetic stirring* agar homogen, Zn 1,6 gr dan HCl 37 % 10 mL ditambahkan pada spesimen. Maka akan muncul gelembung-gelembung, tunggu hingga gelembung-gelembung tersebut hilang, setelah gelembung hilang dapat ditambahkan 10 mL HCl lagi dan diaduk 30 menit menggunakan *magnetic stirrer*. Spesimen di cuci menggunakan *aquades* hingga pH nya normal dan di hidrotermal selama 12 jam dengan temperatur 160 °C. Setelah proses ini hasilnya berupa *graphene*.

3.4.4 Sintesis Elektrokatalis *Graphene* Oksida/X dan *Graphene*/X

Untuk membuat elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X, maka dilakukan dengan tahapan sebagai berikut :

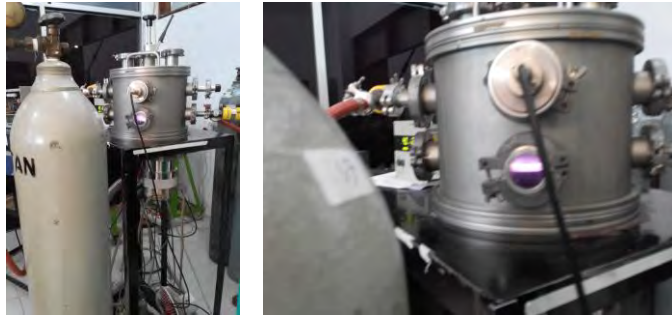
3.4.4.1 Impregnasi *graphene* oksida dan *graphene*

Proses impregnasi *graphene* dan *graphene* oksida pada *carbon cloth* dengan metode ultrasonifikasi yaitu *carbon cloth* dimasukkan pada larutan *graphene* oksida dan *graphene* (dilarutkan dengan *aquades*) lalu di ultrasonifikasi selama 1 jam pada mesin ultrasonik.

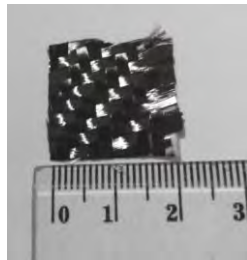
3.4.4.2 Proses *sputtering* dengan Au, Pd dan PdAu.

Setelah diultrasonifikasi, *carbon cloth* yang diimpregnasi *graphene* oksida dan *graphene* disputter dengan logam X (X=Au, Pd dan PdAu) menggunakan *physical vapour deposition* (PVD) dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit. Daya yang digunakan saat *sputter* Au adalah 50 watt, tekanan rotari $2,8 \times 10^{-2}$

mbar, tekanan turbo $5,8 \times 10^{-5}$ mbar, tekanan gas argon 4×10^{-2} mbar. Sedangkan saat *sputter* dengan logam Pd daya yang digunakan 300 watt.



Gambar 3.8 Alat yang digunakan pada proses *sputter* di BATAN



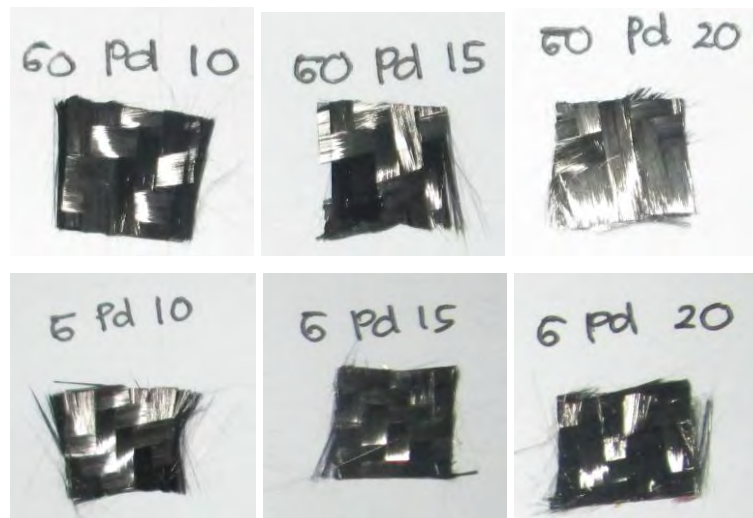
Gambar 3.9 Spesimen *carbon cloth* ukuran 2x2 cm



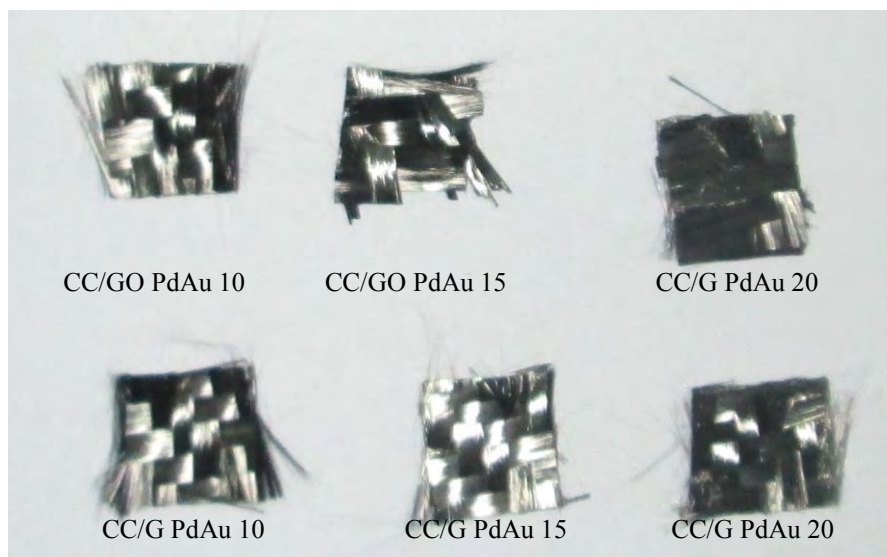
Gambar 3.10 spesimen *carbon cloth/graphene* oksida setelah di *sputter* Au dengan variasi *sputter time* (a)10 (b)15 (c)20 menit, ukuran sampel 2x2 cm



Gambar 3.11 Spesimen *carbon cloth/graphene* setelah di *sputter* Au dengan variasi waktu (a)10 (b)15 (c)20 menit, ukuran sampel 2x2 cm.



Gambar 3.12 Spesimen *graphene* oksida/Pd dan *graphene*/Pd dengan variasi *sputter* time 10, 15 dan 20 menit ukuran 1x1 cm.



Gambar 3.13 Spesimen *graphene* oksida/PdAu dan *graphene*/PdAu dengan variasi *sputter* time 10, 15 dan 20 menit ukuran 1x1 cm

Alat *physical vapour deposition* (PVD) ditunjukkan oleh Gambar 3.8, yang dimiliki oleh BATAN (Yogyakarta). Gambar 3.9 menunjukkan substrat *carbon cloth* yang belum di deposisi *graphene* oksida atau *graphene* selain itu juga belum di *sputter* Au. Gambar 3.10 dan 3.11 merupakan gambar spesimen elektrokatalis *graphene* oksida/Au dan *graphene*/Au dengan variasi *sputter* time 10, 15 dan 20 menit. Spesimen elektrokatalis berukuran 2 x 2 cm yang kemudian

di potong menjadi ukuran 1 x 1 cm untuk di uji CV. Gambar 3.12 menunjukkan spesimen yang telah di *sputter* Pd dengan variasi *sputter* time 10, 15 dan 20 menit. Gambar 3.13 menunjukkan spesimen yang telah di *sputter* PdAu dengan variasi *sputter* time 10,15 dan 20 menit

3.4.5 Pengujian Karakterisasi dan Elektrokimia

Untuk mengetahui karakteristik dan kinerja dari elektrokatalis yang dihasilkan, maka dilakukan 3 pengujian, yaitu *X-Ray Diffraction* (XRD), *Scanning Electron Microscope* (SEM) dan *Cyclic Voltammetry*(CV) .

3.4.5.1 *Scanning electron microscope* (SEM)

Scanning Electron Microscope (SEM) adalah sebuah mikroskop elektron yang di desain untuk menyelidiki permukaan dari objek solid secara langsung. SEM memiliki perbesaran 10 – 3000000 x, *depth of field* 4 – 0.4 mm dan resolusi sebesar 1 – 10 nm. Kombinasi dari perbesaran yang tinggi, *depth of field* yang besar, resolusi yang baik, kemampuan untuk mengetahui komposisi dan informasi kristalografi membuat SEM banyak digunakan untuk keperluan penelitian dan industri.



Gambar 3.14 instrumen SEM

Uji SEM dilakukan pada grafit (bahan baku), grafit oksida, *graphene* oksida, *graphene*, elektrokatalis *graphene* oksida/X dan elektrokatalis *graphene*/X. Tujuan dari uji SEM adalah untuk melihat morfologi dari spesimen sebelum dan sesudah dilakukan proses sintesis. Selain itu juga dilakukan uji SEM-

EDAX untuk menganalisa kandungan unsur yang ada pada spesimen. Alat uji SEM menggunakan INSPECT S50.

3.4.5.2 X-Ray Diffraction (XRD)

Difraksi sinar X (X-ray Diffractometer), atau yang sering dikenal dengan XRD, adalah merupakan instrumen yang digunakan untuk mengidentifikasi material kristalit maupun non-kristalit, sebagai contoh identifikasi struktur kristalit (kualitatif) dan fasa (kuantitatif) dalam suatu bahan dengan memanfaatkan radiasi gelombang elektromagnetik sinar X. Dengan kata lain, teknik ini digunakan untuk mengidentifikasi fasa kristalin dalam material dengan cara menentukan parameter struktur kisi serta untuk mendapatkan ukuran partikel.



Gambar 3.15 Instrumen XRD PANalytical

Uji XRD dilakukan pada grafit (bahan baku), grafit oksida, *graphene* oksida, *graphene*, elektrokatalis *graphene* oksida/X dan elektrokatalis *graphene*/X. Tujuannya untuk menganalisa struktur dari material dan kesesuaian penelitian ini dengan penelitian sebelumnya. Instrument XRD yang digunakan adalah PANalytical. Instrumen XRD ditunjukkan pada Gambar 3.15.

3.4.5.3 Pengujian *Cyclic Voltammetry* (CV)

Banyak instrument elektrokimia yang dapat digunakan untuk menguji kemampuan suatu elektrokatalis, namun pada penelitian ini digunakan CV untuk mengukur ECSA dan I_f/I_b yang menunjukkan toleransi terhadap CO *poisoning*.

Uji CV dilakukan menggunakan sel standar tiga elektroda pada temperatur kamar. Elektrolit yang digunakan pada pengujian ini adalah KOH 1 M. sebuah kawat Pt digunakan sebagai elektroda konter dan Ag/AgCl digunakan sebagai elektroda referensi. Semua nilai potensial dibandingkan dengan elektroda referensi. Pengukuran CV untuk evaluasi kinerja oksidasi metanol dan luas permukaan aktif sampel direkam dengan batas potensial dari -1 V hingga 0.5 V (vs Ag/AgCl) pada laju pemindaian 50 mV/s dalam elektrolit kalium hidroksida (KOH) 1 M dan 1 M KOH yang mengandung 1 M metanol (CH₃ OH). Alat yang digunakan adalah e-DAQ.

3.4.5.3.1 Pembuatan Elektrode kerja

Elektrode kerja dibuat dari batang karbon yang diambil dari baterai AAA. Kemudian batang karbon dicuci menggunakan aquades hingga gelembung-gelembung pengotornya hilang lalu di keringkan. Setelah kering, batang karbon dibungkus dengan kabel *shrinkage* dan dipanaskan hingga kabel *shrinkage* menempel pada batang karbon. Batang karbon yang telah diselimuti dengan kabel *shrinkage* dimasukkan pada tabung dirham yang telah lubang pada kedua ujungnya dengan memberikan sedikit ruang untuk elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X, lalu di lem menggunakan lem epoksi hingga kering. Gambar elektroda kerja dapat dilihat pada Gambar 3.16.



Gambar 3.16 Elektroda kerja

3.4.5.3.2 Pembuatan Larutan KOH 1 M

Langkah-langkah yang dilakukan saat membuat larutan untuk menguji *electrochemically active surface area* (ECSA) adalah sebagai berikut :

$$M = \frac{m}{mr \times V} \quad [3.1]$$

Dimana,

M : molaritas (Molar)

m : massa (gram)

mr : molekul relatif

V : volume (liter)

Dari perhitungan yang telah dilakukan untuk membuat 1 liter KOH 1 M diperlukan 56 gram serbuk KOH.

- Menghitung masa KOH yang diperlukan untuk membuat 1 liter KOH dengan molaritas 1.
- Menimbang serbuk KOH 56 gram
- Kemudian 56 gram serbuk KOH dilarutkan dalam 1 liter *aquades* dan diaduk hingga larut. Maka terbentuk 1 liter larutan KOH 1 M.
- Langkah selanjutnya yaitu *bubling* larutan KOH 1 M dengan gas nitrogen (N₂), dengan cara larutan KOH 1 M dimasukkan dalam labu ukur kemudian dialiri dengan gas N₂. Proses *bubling* dapat dilihat pada Gambar 3.17



Gambar 3.17 *Bubling* larutan KOH dengan gas nitrogen

3.4.5.3.3 Pembuatan Elektrolit KOH-metanol 1 M

Langkah-langkah untuk membuat larutan 1 liter KOH-metanol 1 M yaitu:

- a Menimbang serbuk KOH 56,1 gr
- b Mencampur 56,1 gr serbuk KOH dengan 40,45 ml metanol, kemudian ditambah air hingga menjadi 1 liter
- c Larutan diaduk

3.5 Rancangan Penelitian

Rancangan penelitian yang telah dilakukan ditunjukkan pada Tabel 3.1. Semua pengujian dilakukan pada 18 sampel elektrokatalis, yakni pengujian SEM, XRD dan CV. Namun bahan baku (grafit), dan material grafit oksida, *graphene* oksida dan *graphene* (material proses sintesis) juga dilakukan karakterisasi SEM dan XRD.

Tabel 3.1 Rancangan penelitian

Material		SEM	XRD	CV
Grafit		✓	✓	-
Grafit Oksida		✓	✓	-
<i>Graphene</i> oksida		✓	✓	-
<i>Graphene</i>		✓	✓	-
<i>Carbon cloth</i> (CC)		✓	✓	✓
<i>Carbon cloth/graphene</i> oksida (CC/GO)		✓	✓	✓
<i>Carbon cloth/ graphene</i> (CC/G)		✓	✓	✓
Elektrokatalis CC/GO Au	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓

Elektrokatalis CC/G Au	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓
Elektrokatalis CC/GO Pd	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓
Elektrokatalis CC/G Pd	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓
Elektrokatalis CC/GO PdAu	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓
Elektrokatalis CC/G PdAu	10 menit	✓	✓	✓
	15 menit	✓	✓	✓
	20 menit	✓	✓	✓

3.6 Jadwal Kegiatan

Jadwal kegiatan penelitian ditunjukkan pada tabel 3.2

Tabel 3.2 Jadwal kegiatan penelitian

Kegiatan	Juli				Agustus				Sept				Okt				Nov				Des							
	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4				
Studi literatur	■																											
Sintesis	■																■											
Pengujian													■															
Pengumpulan data													■															
Analisa data																												
Menulis laporan																												

Kegiatan	Jan				Feb				Maret				April				Mei				Juni			
	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
Studi literatur	■																							
Sintesis																								
Pengujian	■																							
Pengumpulan data	■																							
Analisa data					■																			
Menulis laporan					■																			

BAB IV

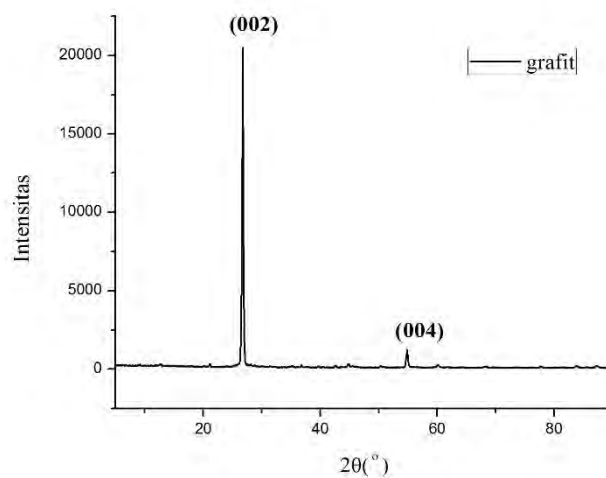
ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN

Penelitian ini mengaplikasikan *graphene* oksida dan *graphene* yang disintesis dari grafit menggunakan metode hummer yang telah dimodifikasi sebagai elektrokatalis dengan substrat *carbon cloth* dan disputer menggunakan material X, yaitu emas (Au), Paladium (Pd) dan PdAu. Elektrokatalis *graphene* oksida/X dan *graphene*/X diaplikasikan pada *direct methanol fuel cell* (DMFC) dan dianalisa pengaruh kerjanya. Pengujian yang dilakukan pada material bahan baku, material hasil proses sintesis dan elektrokatalis *graphene* oksida (GO)/X dan *graphene* (G)/X adalah XRD, SEM dan CV.

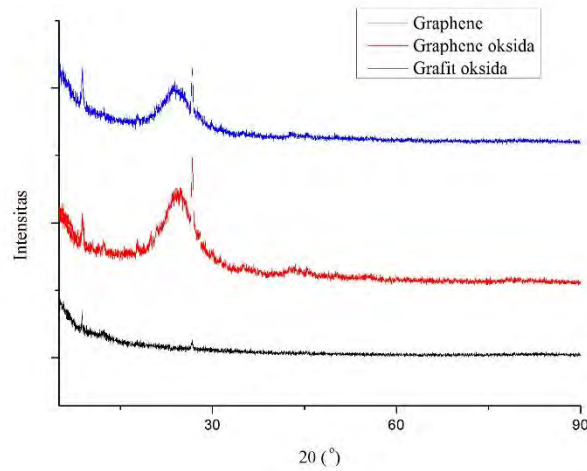
4.1 Pengujian XRD

4.1.1 Pengujian XRD material hasil proses sintesis

Sebelum membahas mengenai pengujian XRD pada elektrokatalis *graphene* oksida/x dan *graphene*/x ($x = \text{Au}, \text{Pd}$ dan PdAu), maka akan dibahas terlebih dahulu mengenai pengujian XRD terhadap material bahan baku (grafit dan *carbon cloth*) dan material hasil proses sintesis yaitu grafit oksida, *graphene* oksida, *graphene*, *carbon cloth* yang telah dideposisikan *graphene* oksida dan *carbon cloth* yang telah dideposisikan *graphene*.



Gambar 4.1 Hasil uji XRD grafit



Gambar 4.2 Hasil uji XRD grafit oksida, *graphene* oksida, *graphene*

Gambar 4.1 merupakan hasil karakterisasi terhadap material grafit menggunakan XRD, puncaknya dengan intensitas 1969,21 pada sudut $2\theta = 26,78^\circ$ yang merupakan karakteristik dari material grafit. Pada $2\theta = 26,78^\circ$ puncak grafit sangat tajam yaitu pada bidang (002), sedangkan pada $2\theta = 54,88^\circ$ terdapat *peak* yang intensitasnya rendah pada bidang (004). Grafit memiliki struktur heksagonal. Hasil karakterisasi XRD terhadap material grafit sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Shu dkk, 2015.

Grafit oksida ditunjukkan oleh grafik berwarna hitam dengan *peak* yang sangat lemah pada $2\theta = 12,28^\circ$. Puncak dari grafit oksida jauh bergeser dari puncak grafit pada $2\theta = 26,78^\circ$. Namun puncak grafit oksida mengalami penurunan intensitas yang signifikan dibandingkan dengan puncak milik grafit. Hal ini disebabkan oleh perlakuan yang diberikan kepada grafit dengan metode Hummer yang membuat grafit berikatan dengan oksigen (O_2) sehingga membentuk oksida. Pada penelitian ini grafit oksida memiliki puncak yang paling rendah dibandingkan dengan grafit, *graphene* oksida dan *graphene*, sehingga grafit oksida mengindikasikan struktur *amorf*. Selain itu juga dapat dibuktikan dari nilai FWHM yang paling besar. Nilai FWHM adalah lebar dari setengah puncak yang dihasilkan.

Graphene oksida memiliki puncak pada $2\theta = 24,95^\circ$ dengan intensitas yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan *graphene*. Sedangkan *graphene* mempunyai puncak yang berada pada $2\theta = 23,56^\circ$, dengan intensitas lebih rendah. Untuk

menghitung jarak antar layer ($d_{spacing}$) digunakan hukum Bragg yang dinyatakan pada persamaan 4.1. $d_{spacing}$ tertinggi dimiliki oleh grafit oksida karena memiliki ikatan dengan gugus fungsional seperti gugus oksigen, gugus hidroksil, dll, yang menyebabkan jarak antar layernya memiliki nilai yang tinggi. Sedangkan untuk grafit, *graphene* oksida dan *graphene* memiliki nilai $d_{spacing}$ yang tidak jauh berbeda, memiliki nilai $d_{spacing} > 3 \text{ \AA}$.

Hukum Bragg :

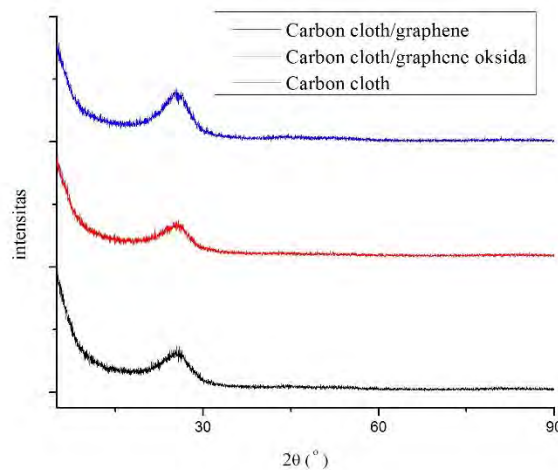
$$d \text{ spacing} = \frac{\lambda}{2 \sin \theta} \quad [4.1]$$

Dimana,

$d_{spacing}$: jarak antar layer

λ : panjang gelombang CuK. α (1,54 \AA)

θ : sudut difraksi ($^{\circ}$)

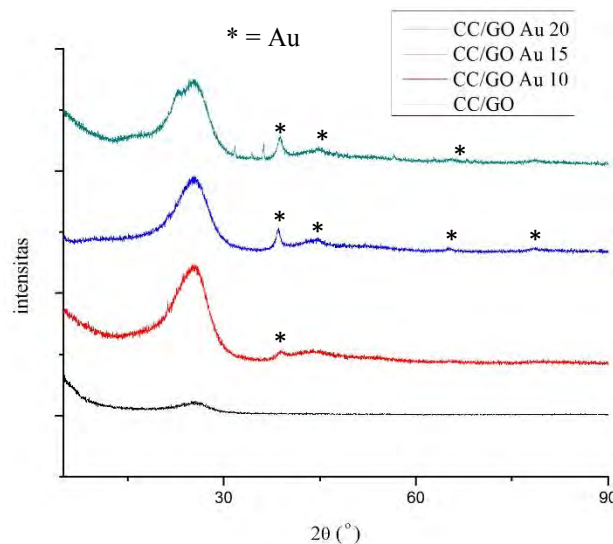


Gambar 4.3 Hasil uji XRD *carbon cloth*, *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene*

Gambar 4.3 menunjukkan hasil pengujian XRD pada material *carbon cloth*, *carbon cloth* yang dideposisikan *graphene* oksida (CC/GO) dan *carbon cloth* yang telah di deposisikan material *graphene* (CC/G). Pada material *carbon cloth*

memiliki puncak $2\theta = 26,55^\circ$, sedangkan *carbon cloth*/GO memiliki puncak $2\theta = 26,55^\circ$ dan *carbon cloth/graphene* memiliki puncak $2\theta = 25,66^\circ$. Pergeseran 2θ pada *carbon cloth* dan *carbon cloth*/GO tidak terlalu signifikan. Selain itu, nilai d_{spacing} antar spesimen juga hampir sama. Sedangkan berdasarkan nilai dari intensitas puncak dan nilai FWHM yang tertinggi dapat dikatakan *carbon cloth* sebagai material dengan struktur amorf. Karena ketika *carbon cloth* di deposisikan *graphene* maka terjadi kenaikan intensitas yang cukup tinggi, sehingga dari hasil XRD sampel CC/G memiliki intensitas *peak* yang paling tinggi. Jadi CC/G dapat dikatakan paling stabil.

4.1.2 Pengujian XRD Elektrokatalis *Graphene* Oksida/Au dan *Graphene*/Au

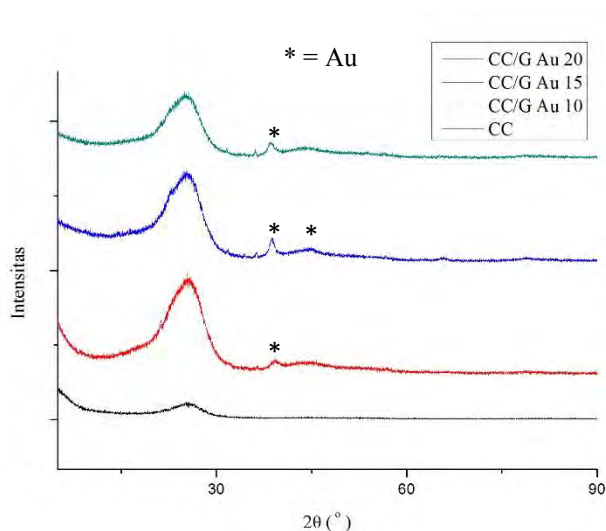


Gambar 4.4 Hasil pengujian XRD CC/GO yang telah *sputter* Au dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.

Gambar 4.4 menunjukkan gambar hasil uji XRD *carbon cloth/graphene* oksida yang *sputter* Au dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit. *Peak* Au ditunjukkan oleh tanda * berada pada $2\theta = 38^\circ$, 44° , 47° , 65° , 67° dan 78° dengan nilai intensitas masing-masing yang cukup rendah < 600 . Data hasil XRD menunjukkan *peak* Au muncul paling banyak dan dengan intensitas paling tinggi pada variasi *sputter time* Au 15 menit. Kemudian di ikuti variasi waktu *sputter* 20 menit dan 10 menit. Hal ini sesuai dengan hipotesis dan hasil SEM-EDAX yang

menyatakan bahwa variasi *sputter* Au 15 menit memiliki kandungan Au yang paling tinggi dibandingkan 20 dan 10 menit. Selain itu dari hasil XRD dapat diketahui bahwa pada sampel elektrokatalis benar-benar ada Au yang terdeposisi.

nilai d_{spacing} tertinggi dimiliki oleh *carbon cloth*/GO yang belum *sputter* Au, dimana menunjukkan bahwa jarak antar layernya masih tinggi, karena adanya gugus oksigen dan gugus fungsional yang lain pada *graphene* oksida. Namun setelah *sputter* dengan Au mengalami penurunan jarak antar layer (d_{spacing}) karena sebagian gugus oksigen dan gugus fungsional lain telah hilang akibat proses *sputter* (akibat termal).



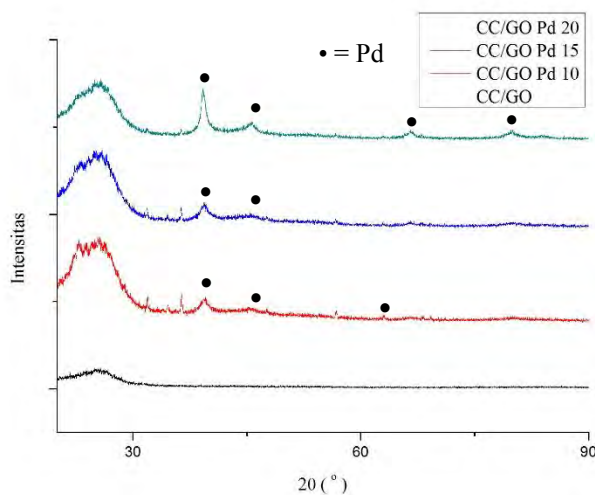
Gambar 4.5 Hasil pengujian XRD sampel *carbon cloth/graphene* yang telah di *sputter* Au dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.

Dari Gambar 4.5 dapat dilihat tentang hasil uji XRD *peak* tunggal CC/GO dan CC/G setelah *sputter* menggunakan logam Au. Menurut ICCD No.00-004-0784 dan JCPDS : 65-2867 *peak* Au muncul pada $2\theta = 36,12^\circ; 38,7^\circ; 45^\circ; 65^\circ; 77,5^\circ; 81,7^\circ$. CC/G *sputter* 10 dan 20 menit hanya muncul 1 *peak* milik Au yaitu sekitar $36-38^\circ$. Sedangkan CC/G *sputter* Au 15 menit muncul 2 *peak* pada $2\theta = 38,7^\circ$ dan 45° dan juga memiliki *peak* paling tinggi dengan intensitas 613 pada $2\theta = 38,7^\circ$, sehingga dapat dikatakan paling stabil. *Peak* yang paling lemah di miliki oleh *carbon cloth*/G dimana paling amorf dengan nilai intensitas paling rendah dan nilai

FWHM paling tinggi. Kemudian nilai d_{spacing} juga mengalami penurunan setelah *sputter* Au, jadi jarak antar layernya semakin kecil akibat hilangnya sebagian gugus fungsional saat proses *sputter*. Contohnya lepasnya ikatan oksida atau pengotor saat proses *sputter* dan sebagian berikatan dengan Au. Selain itu hilangnya gugus oksida juga disebabkan karena proses penguapan akibat *sputter* yang menghasilkan termal.

Hasil pengujian XRD *sputter* dengan Au pada penelitian ini sudah sesuai dengan hasil XRD penelitian Shu dkk, 2015. Sehingga proses *sputter* Au memberikan dampak yang signifikan terhadap perubahan material elektrokatalis, mulai dari material grafit hingga terbentuk material elektrokatalis *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene* dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit. Dari hasil XRD diketahui bahwa *peak* Au muncul paling banyak pada variasi *sputter time* 15 menit baik pada material deposit *graphene* oksida ataupun *graphene*.

4.1.3 Pengujian XRD Elektrokatalis *Graphene* Oksida/Pd dan *Graphene*/Pd



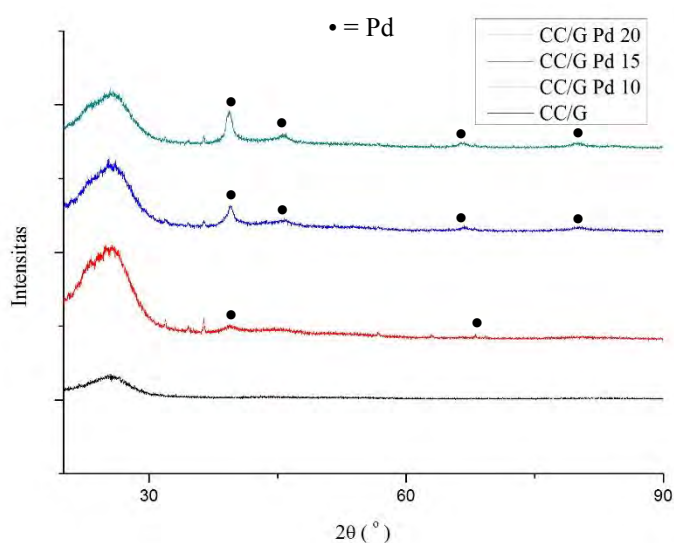
Gambar 4.6 Hasil uji XRD material CC/GO dengan variasi *sputter time* Pd 10, 15 dan 20 menit

Hasil XRD elektrokatalis CC/GO yang telah *sputter* dengan Pd dapat dilihat pada Gambar 4.6, selain *peak* dari *graphene* dan *graphene* oksida dapat

dilihat adanya *peak* milik Pd. Menurut JCPDS No.65-6174, *peak* Pd terdapat pada $2\theta = 40,08^\circ$, $46,62^\circ$ dan $68,14^\circ$ (Liu dkk, 2015).

Dari hasil analisa menunjukkan bahwa *graphene* oksida mengalami peningkatan intensitas yang sangat signifikan menjadi lebih kristalin setelah menjadi elektrokatalis GO/Pd (lebih stabil). Sehingga dari hasil XRD menunjukkan material GO akan lebih stabil jika sebagai elektrokatalis/Pd dibandingkan ketika berdiri sendiri sebagai material GO.

Selain *peak* milik GO, yang muncul pada uji XRD adalah *peak* milik Pd. Pada *peak* dengan $2\theta = 39^\circ$, intensitasnya lebih tinggi dibandingkan dengan *peak* milik Pd yang lain. Selain dibuktikan dengan intensitas *peak*, juga dapat dilihat dari nilai d_{spacing} dimana jarak antar layernya paling tinggi dibandingkan dengan *peak* milik Pd yang lain. Sehingga XRD membuktikan bahwa proses *sputter* Pd dengan PVD dapat membuat lapisan Pd di permukaan *carbon cloth*.



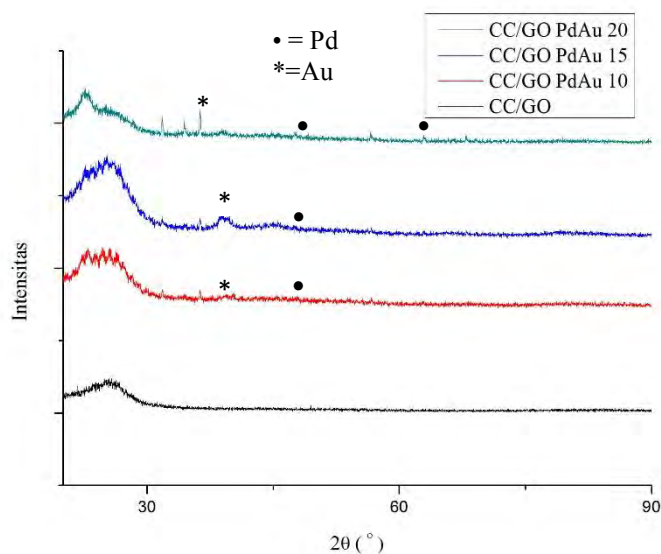
Gambar 4.7 Hasil uji XRD material CC/G dengan variasi *sputter time* Pd 10, 15 dan 20 menit

Hampir sama dengan material CC/GO yang telah di *sputter* Pd. Pada material elektrokatalis CC/G yang telah di *sputter* Pd dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit juga menunjukkan peningkatan intensitas nilai *graphene* dan menunjukkan munculnya *peak* milik Pd pada $2\theta = 39^\circ$, 45° dan 68° . *Peak* milik Pd dapat dilihat pada Gambar 4.7 dengan tanda •. CC/GO tanpa *sputter* Pd hanya

memiliki intensitas yang rendah (amorf) pada $2\theta = 25^\circ$. Setelah disputter dengan Pd variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit, masing-masing mengalami peningkatan intensitas yang sangat signifikan hingga > 1000 . Sehingga dari hasil XRD dapat dikatakan bahwa proses *sputter* dengan Pd mampu melapisi material CC/GO dan CC/G dengan logam Pd dan material menjadi lebih stabil setelah disputter Pd dibuktikan dengan kenaikan intensitas.

4.1.4 Pengujian XRD Elektrokatalis Graphene Oksida/Pd-Au dan Graphene/Pd-Au

Elektrokatalis *graphene* oksida/Pd-Au dan *graphene*/PdAu disintesis dengan mendeposisikan *graphene* oksida dan *graphene* pada substrat *carbon cloth*, Kemudian disputter menggunakan material target Au dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit, lalu disputter lagi dengan material target Pd dengan variasi *sputter time* yang sama yaitu 10, 15 dan 20 menit,

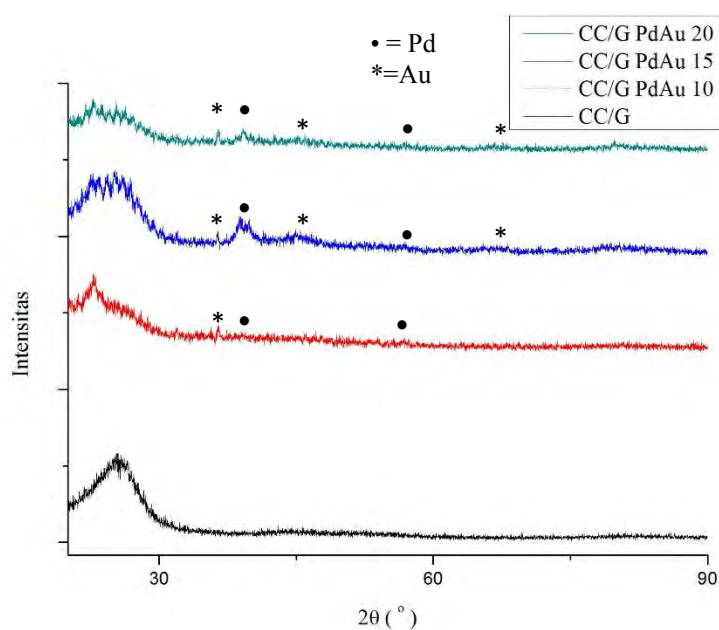


Gambar 4.8 Hasil uji XRD CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu 10,15 dan 20 menit

Gambar 4.8 menunjukkan hasil uji XRD elektrokatalis *graphene* oksida/PdAu dimana *peak* milik Au ditunjukkan dengan tanda * dan *peak* milik Pd ditunjukkan dengan tanda •. *Peak* material yang dominan muncul adalah Pd, sebab proses *sputter* dilakukan dengan lapisan pertama Au dan lapisan kedua Pd.

Sehingga lapisan Au tertutup oleh lapisan Pd. Jadi Pd lebih dominan, namun dari hasil uji XRD diketahui bahwa PdAu sudah berhasil dilapiskan pada sampel CC/GO.

Dari data perhitungan hasil uji XRD sampel CC/GO yang mengalami peningkatan intensitas setelah *sputter* dengan PdAu. Sehingga proses *sputter* PdAu dapat meningkatkan stabilitas dari material. Selain itu dapat dikatakan bahwa proses *sputter* PdAu telah mampu melapisi material CC/GO dengan logam Pd dan logam Au. Pengujian XRD yang telah dilakukan pada elektrokatalis CC/GO yang telah *sputter* menggunakan PdAu menunjukkan beberapa *peak* milik Pd pada $2\theta = 40^\circ, 46^\circ, 67,8^\circ, 82^\circ$ sesuai dengan JCPDS : 65-2867 dan *peak* milik Au pada $2\theta = 38^\circ, 43,8^\circ, 64,2^\circ$ dan $77,5^\circ$ sesuai dengan JCPDS : 65-2870 (Chen dkk, 2015).



Gambar 4.9 Hasil uji XRD material CC/G dengan variasi *sputter time* PdAu 10,15 dan 20 menit,

Sama dengan CC/GO Pengujian XRD yang telah dilakukan pada elektrokatalis CC/G yang telah *sputter* menggunakan PdAu menunjukkan beberapa *peak* milik Pd ($40^\circ, 46^\circ, 67,8^\circ, 82^\circ$) sesuai dengan JCPDS : 65-2867 dan *peak* milik Au ($38^\circ, 43,8^\circ, 64,2^\circ$ dan $77,5^\circ$) sesuai dengan JCPDS : 65-2870 (Chen dkk, 2015).

Dan material yang paling dominan adalah *sputter* Pd yang dilakukan dengan membuat lapisan Au kemudian ditutup dengan lapisan Pd. Sehingga instrumen XRD menunjukkan Pd sebagai material dominan karena berada pada lapisan atas. Namun *peak* milik Au tetap muncul pada spesimen elektrokatalis *sputter* logam PdAu.

Peak milik Au muncul terutama pada *peak* dengan $2\theta = 38^\circ$. Sehingga hasil XRD sampel elektrokatalis *sputter* PdAu menunjukkan adanya *peak* logam Au dan *peak* logam Pd. Sehingga proses *sputter* PdAu telah berhasil mendepositkan material Pd dan Au pada substrat *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene*.

4.2 Pengujian SEM

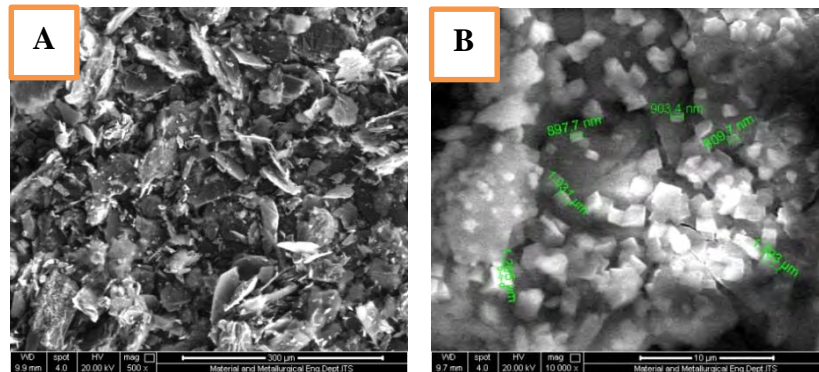
4.2.1 Pengujian SEM material hasil sintesis

Foto Makro

Hasil dari foto makro setelah *sputter* X menunjukkan bahwa hasil *sputternya* baik dalam tingkat kerataanya (skala makro). Permukaan yang berwarna paling kuning (warna emas) adalah variasi waktu 15 menit, 20 menit, kemudian variasi waktu 10 menit pada variasi *sputter* Au. Sedangkan pada material elektrokatalis yang *disputter* dengan Pd dan PdAu hampir sama jika dilihat secara makro, tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan seperti pada elektrokatalis *sputter* Au. Sebab PdAu *disputter* dengan metode 2 lapis, dan lapisan yang paling atas adalah logam Pd. Sehingga logam Pd terlihat lebih dominan.

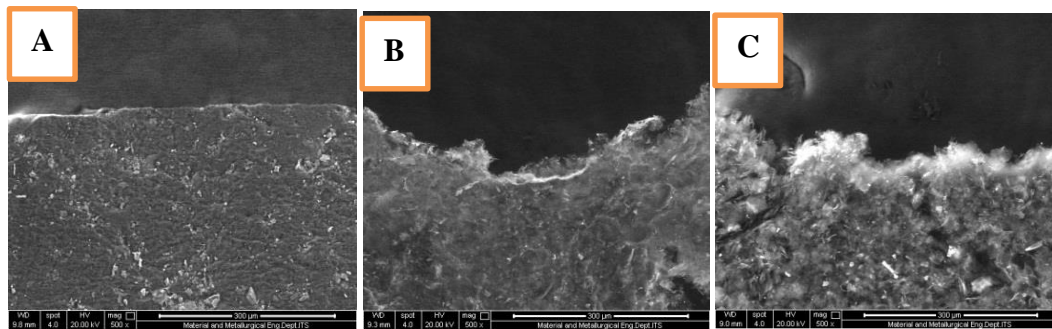
Pengujian *Scanning Electron Microscope* (SEM)

Pengujian SEM dilakukan pada bahan baku (grafit). Struktur mikro grafit dapat dilihat pada Gambar 4.10. Hasil SEM grafit dengan perbesaran 500 x hanya menunjukkan bentuk gumpalan (aglomerat) yang tidak beraturan. Namun dengan perbesaran 10000x menunjukkan gambar struktur mikro yang lebih detail yaitu tetrahedron (segi empat). Struktur mikro dari grafit memiliki ukuran $\pm 1 \mu\text{m}$.

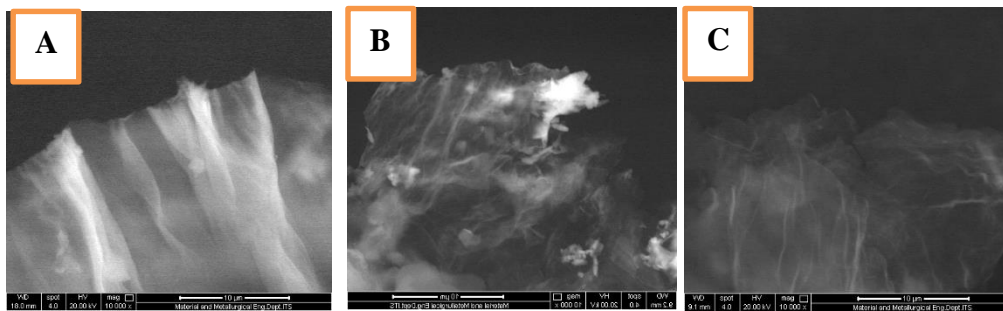


Gambar 4.10 Hasil SEM grafit perbesaran (A)500 x (B)10000 x

Metode yang digunakan untuk mensintesis *graphene* adalah metode hummer yang dimodifikasi. Tahapan pertama yang diperoleh pada proses sintesis *graphene* oksida dan *graphene* adalah grafit oksida, setelah melakukan proses pengadukan bahan selama 24 jam dan dikeringkan. Hasil uji SEM dapat dilihat pada Gambar 4.11 dan Gambar 4.12, dimana grafit oksida berbentuk seperti lembaran namun memiliki permukaan yang lebih tebal dibandingkan *graphene* oksida dan *graphene*. Sedangkan *graphene* oksida dan *graphene* tidak terlihat memiliki perbedaan yang signifikan. Namun pada perbesaran 10000x *graphene* terlihat paling tipis seperti asap.



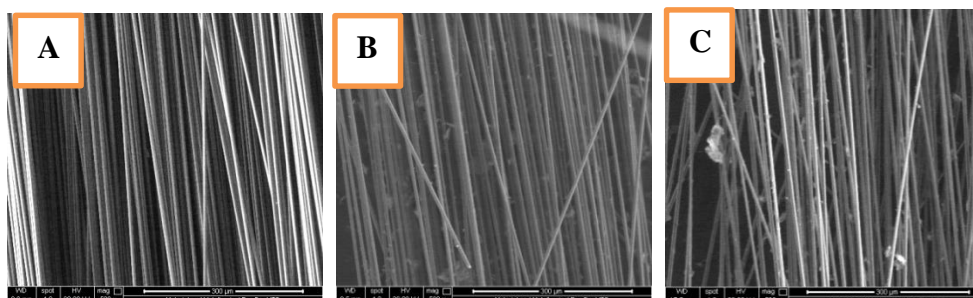
Gambar 4.11 Hasil SEM (A) Grafit Oksida (B) *Graphene* oksida (C) *graphene* perbesaran 500 x



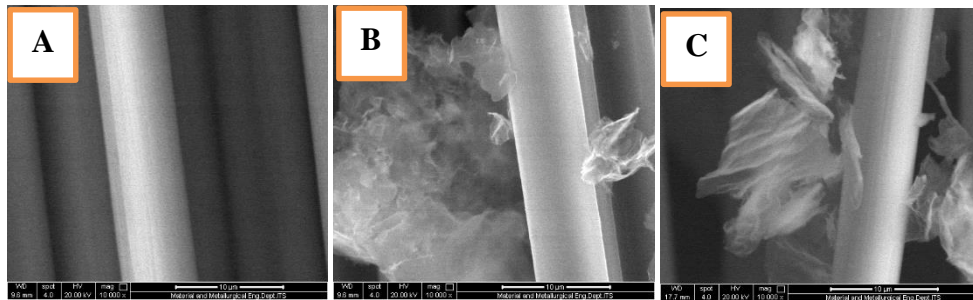
Gambar 4.12 Hasil SEM (A)grafit oksida (B)*graphene* oksida (C)*graphene* perbesaran 10000 x

Carbon cloth merupakan material substrat yang digunakan untuk membuat elektrokatalis dan bersifat konduktif. *Carbon cloth* berupa anyaman serat karbon, sesuai dengan hasil SEM memiliki struktur mikro *line* (seperti benang pada kain). Dari Gambar 4.13 dan Gambar 4.14 dapat dilihat perbedaan antara *carbon cloth* dan *carbon cloth* yang telah dideposisikan *graphene* oksida atau *graphene*. CC/GO dan CC/G memiliki struktur yang *line* seperti benang kemudian disisipi material lembaran kecil yang tidak beraturan bentuknya. Pada perbesaran 10000x lembaran *graphene* oksida dan *graphene* sangat jelas terlihat dan sangat tipis menempel pada batang serat *carbon cloth*.

Namun jika dianalisa dari Gambar 4.13 dan Gambar 4.14 antara *carbon cloth*/GO dan *carbon cloth*/G tidak memiliki perbedaan yang signifikan, lembaran yang menempel di batang serat juga hampir sama. Dari hasil SEM ikatan antara *graphene* atau *graphene* oksida terhadap *carbon cloth* hanya menempel, sehingga masih rapuh dan mudah lepas (tidak stabil).



Gambar 4.13 Hasil SEM (A) *Carbon cloth* (B) *Carbon cloth-Graphene* oksida (C) *Carbon cloth Graphene* perbesaran 500 x

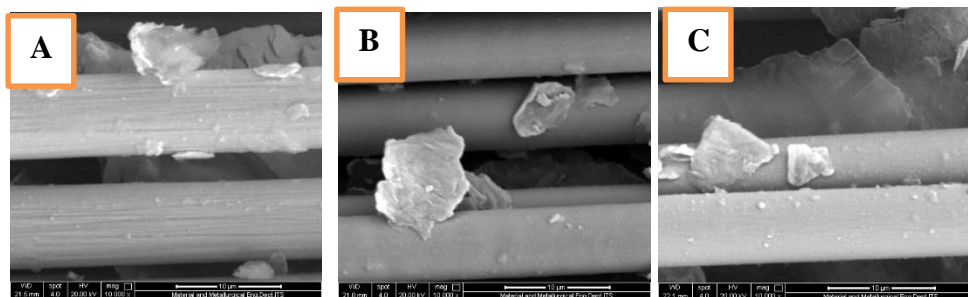


Gambar 4.14 Hasil SEM (A) *Carbon cloth* (B) *Carbon cloth-Graphene oksida* (C) *Carbon cloth Graphene* perbesaran 10000x

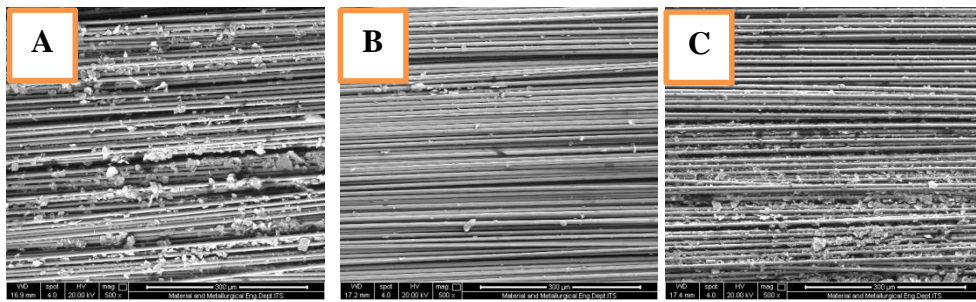
4.2.2 Pengujian SEM Elektrokatalis *Graphene Oksida/Au* dan *Graphene/Au*



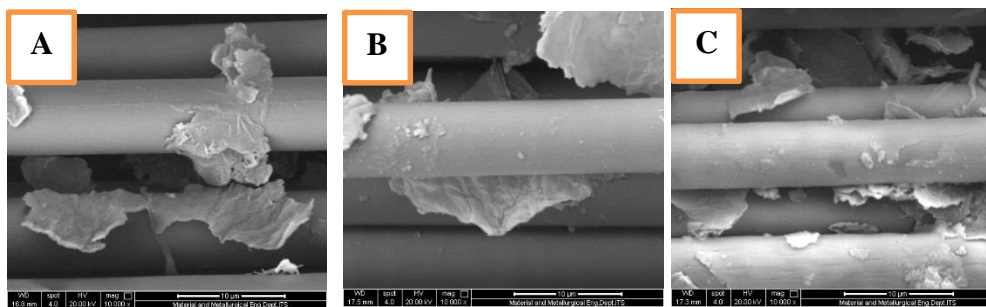
Gambar 4.15 Hasil SEM *carbon cloth/GO* variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x



Gambar 4.16 Hasil SEM *carbon cloth/GO* variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x



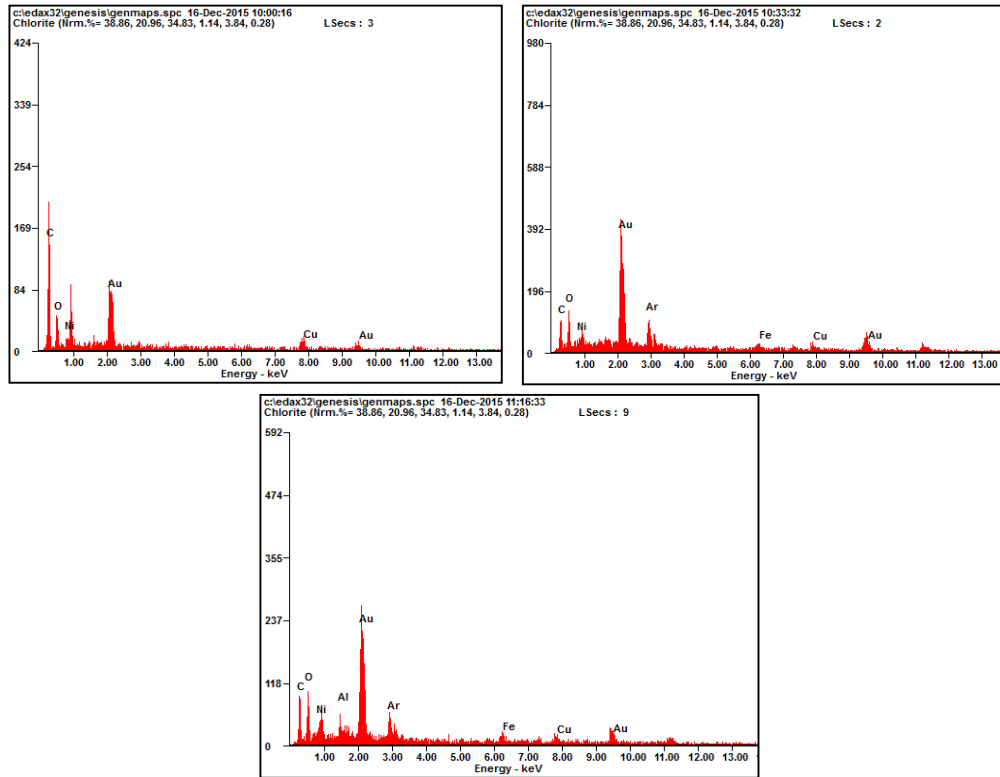
Gambar 4.17 Hasil SEM *carbon cloth/G* variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x



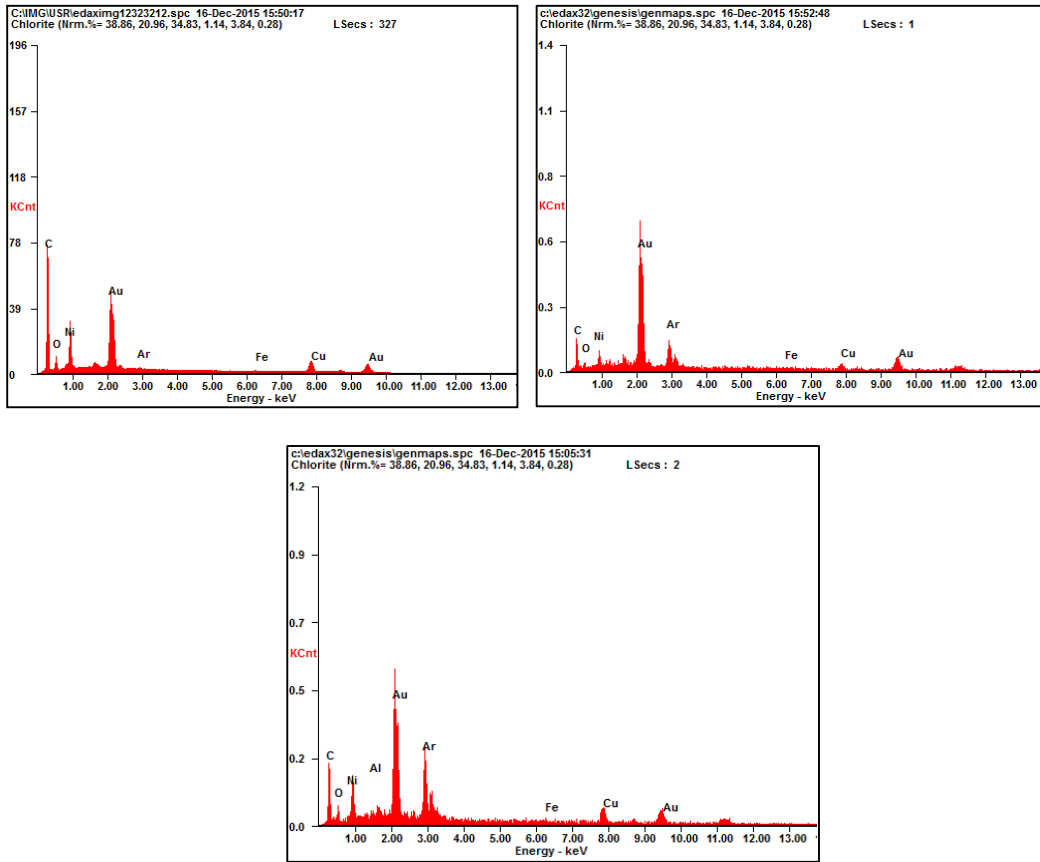
Gambar 4.18 Hasil SEM *carbon cloth/G* variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x

Jika secara fisik setelah *disputter* menggunakan Au, permukaan sampel berubah warna dari hitam menjadi abu-abu ke kuning-kuningan dan sudah tidak rapuh lagi. Foto SEM tidak mengalami perubahan yang signifikan dari segi bentuk, hanya terlihat lebih cerah dengan warna dominan abu-abu serta jika dilihat dengan seksama pada batang *carbon cloth* ada lapisan tipis yang menyelimutinya.

4.2.2.1 Pengujian SEM-EDAX



Gambar 4.19 Uji SEM-EDAX CC/GO dengan variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit



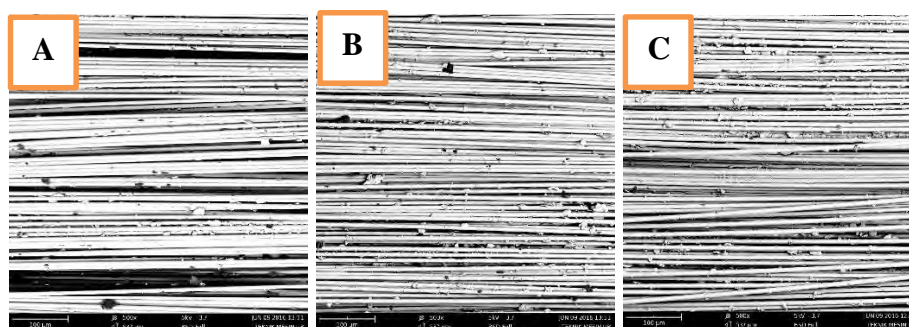
Gambar 4.20 Uji SEM-EDAX CC/G dengan variasi *sputter time* Au (A)10 (B)15 (C)20 menit

Tabel 4.1 Data hasil uji SEM-EDAX elektrokatalis dengan variasi *sputter time* Au 10,15 dan 20 menit.

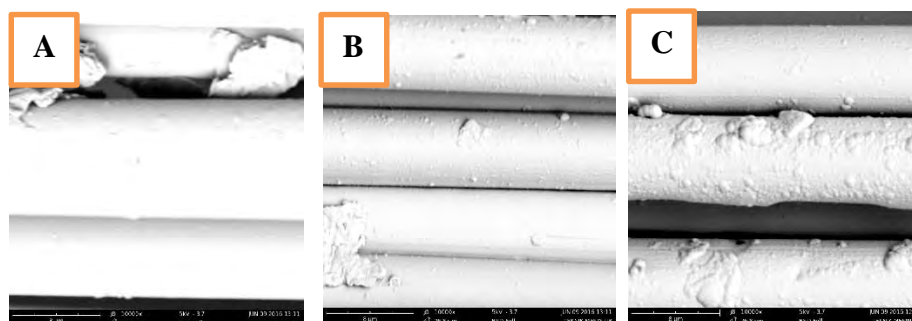
Material	Persentase Au (%)
CC/GO Au 10 menit	15,8
CC/GO Au 15 menit	45,27
CC/GO Au 20 menit	31,64
CC/G Au 10 menit	24,75
CC/G Au 15 menit	52,9
CC/G Au 20 menit	32,99

Spesimen yang telah *disputter* dengan Au secara visual terlihat paling berwarna kuning pada variasi waktu 15 menit. Kemudian setelah di uji SEM-EDAX pada perbesaran 100x, kandungan Au tertinggi ditemui pula pada variasi waktu 15 menit, yang dimiliki oleh *carbon cloth/graphene* dengan persentase 52,99% dan *carbon cloth/graphene* oksida persentase 45,27%. Hal ini sesuai dengan hasil uji XRD yang menunjukkan bahwa variasi 15 menit memiliki intensitas *peak* yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan variasi *sputter time* yang lain sehingga lebih stabil atau tidak amorf. Selain kandungan Au yang dominan, karbon juga muncul dengan persentase tinggi. Sebab substrat *carbon cloth, graphene* dan *graphene* oksida merupakan karbon. Data hasil pengujian SEM-EDAX dapat dilihat pada Gambar 4.19 dan Gambar 4.20. Nilai kandungan Au yang tinggi pada variasi 15 menit, menunjukkan bahwa variasi *sputter time* Au 15 menit paling optimum.

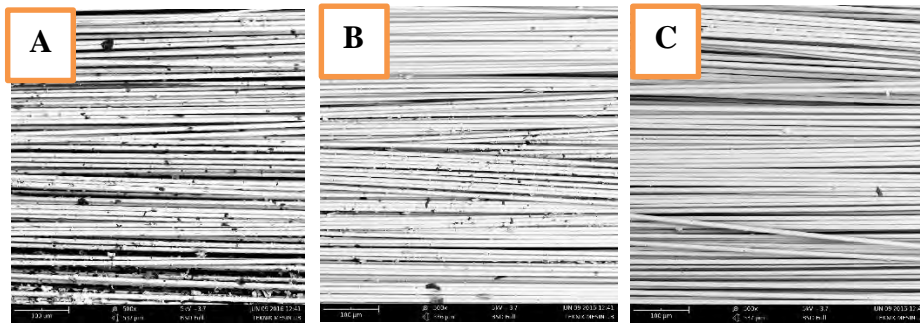
4.2.3 Uji SEM Elektrokatalis *Graphene* Oksida/Pd dan *Graphene*/Pd



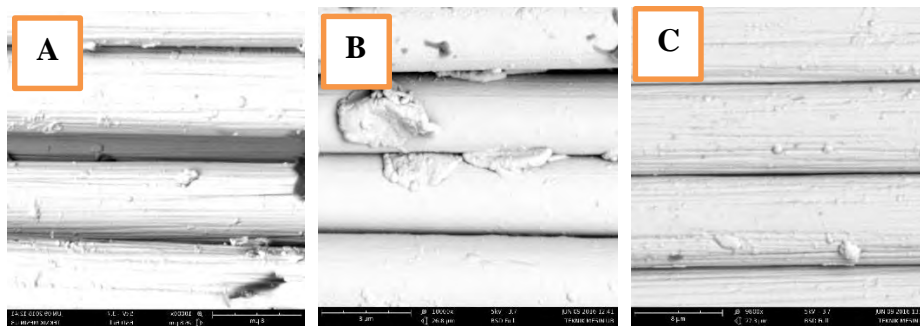
Gambar 4.21 Hasil SEM *carbon cloth*/GO variasi *sputter time* Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x



Gambar 4.22 Hasil SEM *carbon cloth*/GO variasi *sputter time* Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x



Gambar 4.23 Hasil SEM *carbon cloth*/G variasi *sputter time* Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500x



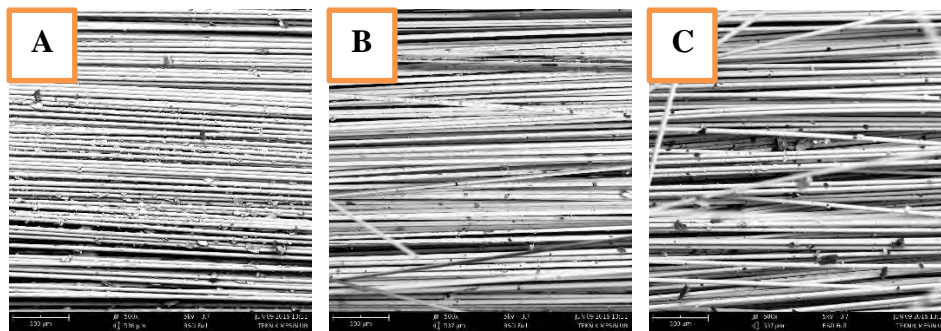
Gambar 4.24 Hasil SEM *carbon cloth*/G variasi *sputter time* Pd (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000x

Uji SEM elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah *sputter* Pd dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit ditunjukkan pada Gambar 4.21, Gambar 4.22, Gambar 4.23 dan 4.24 dimana tidak memiliki banyak perbedaan. Dari gambar dapat dilihat bahwa *graphene* oksida dan *graphene* menyisip diantara batang serat *carbon cloth* yang masing-masing telah tertutup oleh lapisan Pd yang homogen. Selain itu gambar SEM menunjukkan warna yang terang disebabkan oleh lapisan paladium yang berwarna perak. Jika dibandingkan dengan elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah *sputter* dengan Au, CC/GO dan CC/G *sputter* Au memiliki lapisan warna kuning emas yang mengakibatkan hasil uji SEM menjadi lebih gelap.

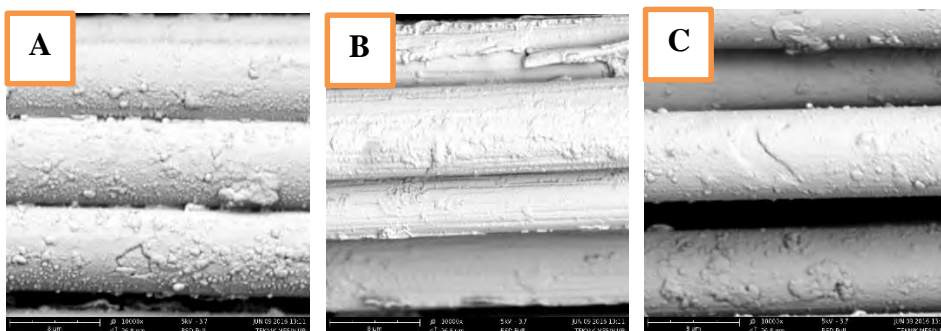
4.2.4 Pengujian SEM elektrokatalis *Graphene* Oksida/PdAu dan *Graphene*/PdAu

Gambar 4.25 – Gambar 4.28 merupakan gambar hasil uji SEM elektrokatalis CC/GO dan CC/G dengan variasi *sputter time* PdAu 10, 15 dan 20

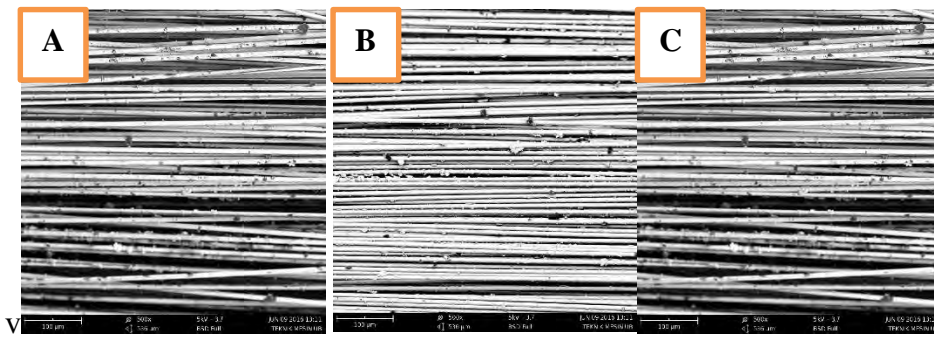
menit. Hasil uji SEM tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan, terdapat *graphene* oksida dan *graphene* yang terselip diantara batang serat *carbon cloth*, namun semua bagian telah tertutup oleh lapisan PdAu. Jika dibandingkan dengan hasil SEM elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah *disputter* dengan Pd, hasil SEM menunjukkan lebih redup atau gelap. Hal ini karena pada spesimen PdAu mengalami 2 x proses *sputter*, dimana material Au menunjukkan hasil SEM yang lebih gelap, Pd terang sedangkan PdAu medium diantara kedua variasi Au dan Pd. Pada spesimen yang telah *disputter* dengan PdAu sama dengan spesimen yang di *sputter* Pd terlihat lapisan hasil *sputter* yang menyelimuti pada batang substrat *carbon cloth*. Sedangkan permukaan yang tidak rata pada spesimen di sebabkan adanya *graphene* lembaran kecil yang tertutup lapisan *sputter*.



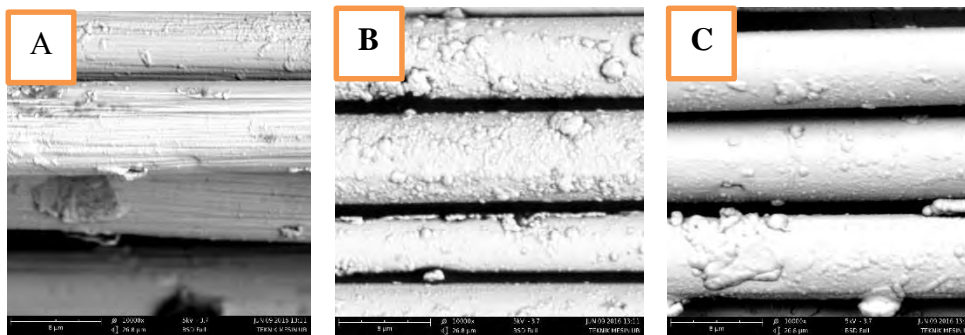
Gambar 4.25 Hasil SEM CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500 x



Gambar 4.26 Hasil SEM CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000 x



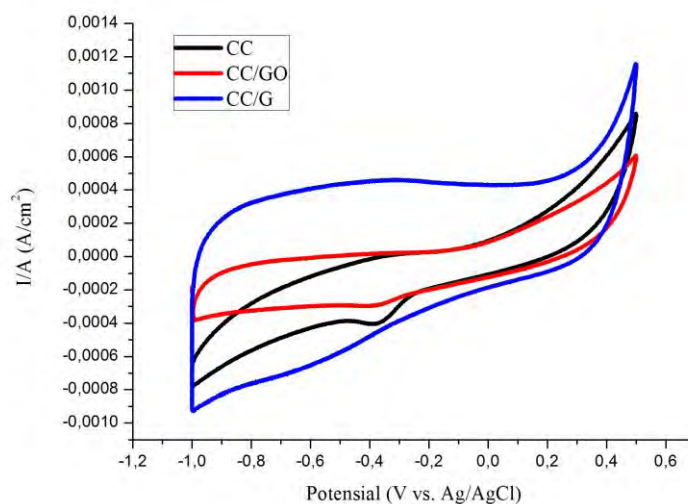
Gambar 4.27 Hasil SEM CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 500 x



Gambar 4.28 Hasil SEM CC/G dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit perbesaran 10000 x

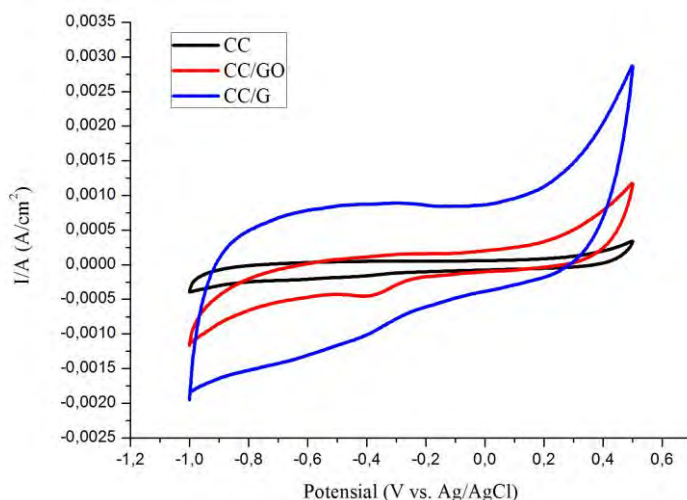
4.3 Pengujian *Cyclic Voltammetry* (CV)

4.3.1 Pengujian CV material hasil proses sintesis



Gambar 4.29 Hasil uji CV untuk material CC, CC/GO dan CC/G dengan elektrolit KOH 1 M.

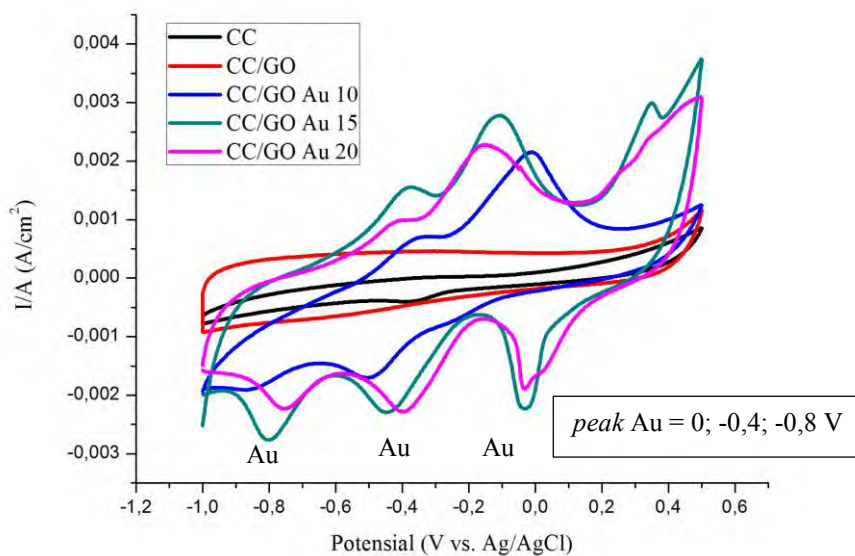
Pengujian *cyclic voltammetry* (CV) pada penelitian ini bertujuan untuk menganalisa luas permukaan aktif (ECSA) dan kemampuan material untuk tidak teracuni oleh gas CO yang ditunjukkan dengan nilai I_f/I_b . Pada Gambar 4.29 dapat dilihat bahwa setiap proses yang dilakukan pada sampel mengubah karakter sampel, hal tersebut dibuktikan dengan perubahan grafik CV. Hasil uji CV menunjukkan *carbon cloth* memiliki luas area grafik CV yang paling sempit, kemudian dengan penambahan *graphene* oksida dan *graphene* menjadi semakin luas. Sehingga penambahan material *graphene* oksida dan *graphene* terbukti dapat meningkatkan luasan grafik hasil uji CV yang berhubungan dengan peningkatan daya simpan muatan. Uji CV ini dilakukan dengan parameter *scan rate* 50 mV menggunakan elektroda referensi Ag/AgCl, larutan elektrolit yang digunakan adalah KOH dan KOH-metanol masing-masing memiliki molaritas 1 M.



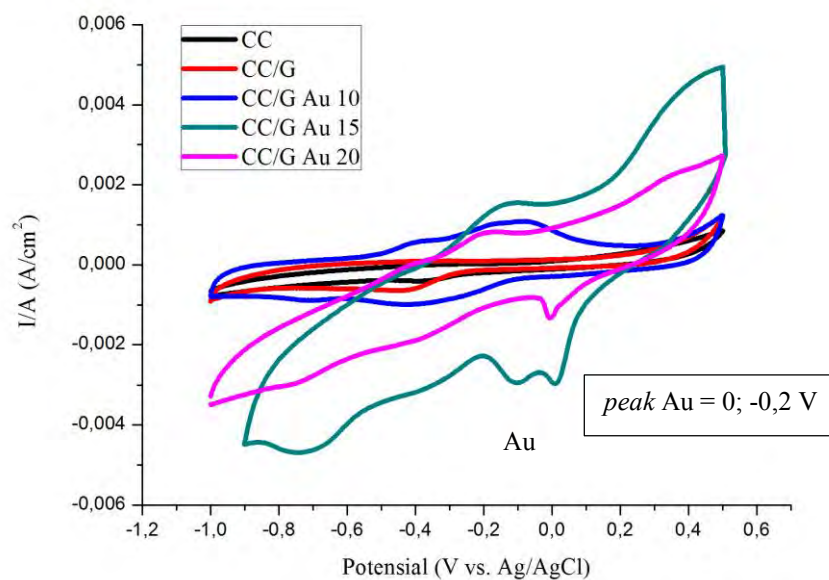
Gambar 4.30 Hasil uji CV untuk material CC, CC/GO dan CC/G dengan elektrolit KOH-metanol 1M.

Pada Gambar 4.30 menunjukkan hasil uji CV pada material *carbon cloth*, *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene* dengan elektrolit KOH-metanol 1 M dan di uji dengan pengaturan yang sama dengan uji CV menggunakan elektrolit KOH. Hasil uji CV ini menunjukkan hasil yang senada dengan uji elektrolit KOH, dimana *carbon cloth* menunjukkan luas area CV yang sempit. Setelah ditambah dengan *graphene* oksida luas areanya bertambah. Kemudian *carbon cloth* dengan *graphene* menunjukkan luas area yang paling luas. Sehingga dapat dikatakan dengan penambahan *graphene* oksida dan *graphene* meningkatkan luasan hasil uji CV, sehingga daya simpan muatannya juga meningkat. Hasil uji CV dengan elektrolit KOH dan KOH metanol menunjukkan hasil dengan pola yang sama dan tidak ada perubahan ketika sampel di uji dengan KOH-metanol. Sebab sampel *carbon cloth*, *carbon cloth/graphene* oksida dan *carbon cloth/graphene* tidak bisa mengoksidasi metanol.

4.3.2 Pengujian CV Elektrokatalis *Graphene* Oksida/ Au dan *Graphene*/Au



Gambar 4.31 Hasil uji CV untuk CC/GO dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 dengan elektrolit KOH 1 M.



Gambar 4.32 Hasil uji CV untuk CC/G dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 menit menggunakan elektrolit KOH 1 M.

Pada gambar 4.31 dan 4.32 menunjukkan *peak* reduksi Au pada potensial 0 V, -0,4 V dan -0,8 V (*carbon cloth/graphene* oksida), 0 v dan -0,2 V (*carbon cloth/graphene*). Sedangkan menurut penelitian Wang, dkk 2013 menunjukkan bahwa *peak* reduksi Au pada E = 0,4 V. menurut penelitian Shu dkk, 2015 *peak* reduksi Au pada E=0,8 V. Sehingga pada penelitian ini terjadi pergeseran *peak* Au ke kiri, yang berarti reaksi terjadi pada energi yang lebih rendah (kekiri lebih negatif). Jadi untuk terjadinya reaksi membutuhkan energi yang rendah.

Hasil uji CV dapat dianalisa untuk menghitung *electrochemically active surface area* (ECSA) dengan mengintegrasikan luas grafik pada *peak* backward sesuai rumusan berikut :

$$ECSA = \frac{Q}{0.21 \times [Au]} \quad [4.2]$$

Dimana,

ECSA : luas permukaan aktif (cm²/mg)

Q : jumlah muatan tiap waktu dalam luasan tertentu (C/cm²)

[Au] : beban katalis dalam luasan tertentu (mg/cm²)

$$Q = \frac{\int \frac{I}{v} dv}{A} \quad [4.3]$$

Dimana,

V : potensial (volt)

I : arus (ampere)

V : *scan rate* (V/s)

A : luas elektroda yang tercelup (cm²)

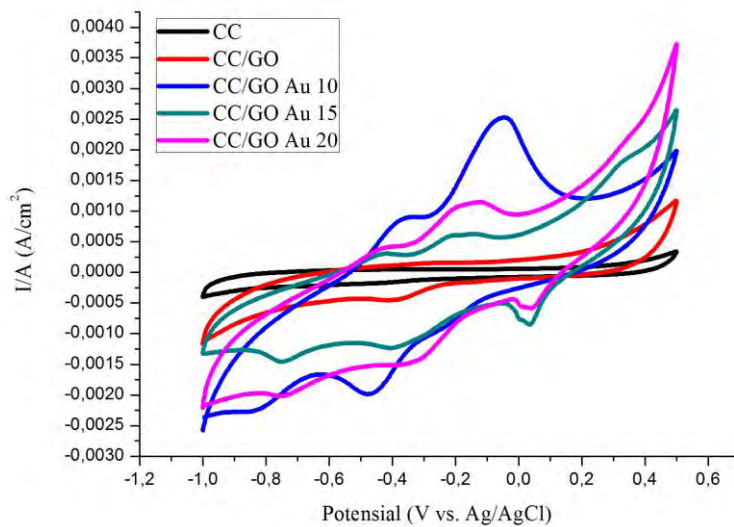
Tabel 4.2 Data hasil perhitungan ECSA untuk material elektrokatalis dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 menit.

Material yang terdeposisi	Variasi <i>sputter time</i> Au	Q (C/cm ²)	ECSA (cm ² /mg)
<i>Graphene oksida</i>	10	0,0121	36,7
	15	0,0358	79,4
	20	0,0309	58,9
<i>Graphene</i>	10	0,0324	31,5
	15	0,0189	79,1
	20	0,0154	39,9

Dari hasil uji CV dengan elektrolit KOH 1 M didapatkan grafik berubah seiring dengan perlakuan yang dilakukan yang dapat dilihat pada Gambar. 4.31 dan Gambar 4.32. *Carbon cloth* di uji CV dengan elektrolit KOH 1 M memiliki luas grafik yang sempit, ditambah GO dan G menjadi semakin luas. Setelah di sputter dengan logam Au maka muncul *peak* reduksi Au pada setiap variasinya. Untuk elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang di *sputter* Au pada semua variasi memiliki *peak* reduksi lebih dari 1 (*peak* ganda) yang muncul pada range potensial -0,8 V hingga 0,2 V.

Setelah dilakukan perhitungan ECSA diperoleh data yang dapat dilihat pada Tabel 4.2. Nilai ECSA CC/GO tertinggi pada variasi *sputter time* 15 menit yaitu 79,4 cm²/mg, lalu variasi sputter 20 menit 58,9 cm²/mg dan variasi *sputter time* 10 menit 36,7 cm²/mg.

Sedangkan pada elektrokatalis CC/G diperoleh nilai ECSA yaitu 79,1 cm²/mg (15 menit); 39,9 cm²/mg (20 menit); 31,5 cm²/mg (10 menit). Nilai ECSA dipengaruhi oleh luasan *peak* reduksi Au dan massa logam Au yang terdeposisi pada sampel elektrokatalis.



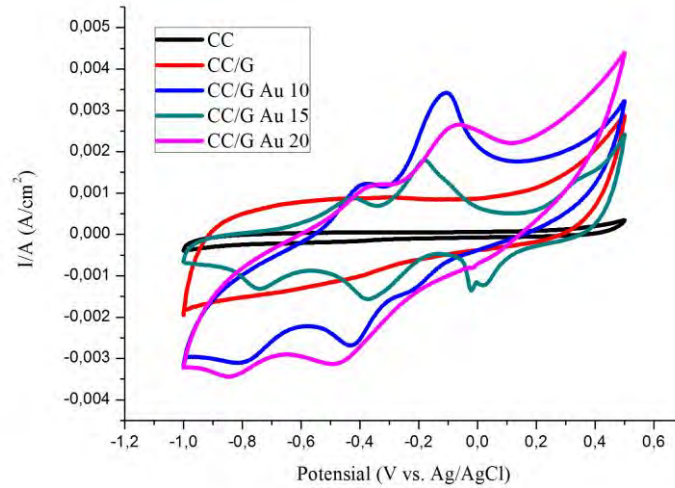
Gambar 4.33 Hasil uji CV untuk CC/GO dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 menit menggunakan elektrolit KOH-metanol 1 M.

Tabel 4.3 Data hasil uji CV dengan KOH-metanol 1 M pada elektrokatalis CC/GO dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.

Material	I_f (A/cm ²)	I_b (A/cm ²)	I_f/I_b
CC/GO Au 10	0,00253	-0,00167	1,52
CC/GO Au 15	0,00185	-0,0005	3,67
CC/GO Au 20	0,00114	-0,00044	2,58

Gambar 4.33 dan Tabel 4.3 menunjukkan gambar dan data hasil perhitungan uji CV dengan elektrolit KOH-metanol 1 M untuk menganalisa kemampuan material elektrokatalis *carbon cloth/graphene* oksida dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit mengoksidasi metanol. Elektrokatalis pada variasi ini menunjukkan *peak* oksidasi yang menunjukkan masing-masing mampu mengoksidasi metanol. Selain itu untuk bisa menggantikan Pt material elektrokatalis harus memiliki toleransi terhadap gas CO yang tinggi ditunjukkan dengan nilai I_f/I_b . CC/GO dengan *sputter time* 15 menit menunjukkan nilai I_f/I_b tertinggi. Jadi selain memiliki nilai ECSA tertinggi variasi *sputter time* 15 menit juga memiliki toleransi terhadap CO yang tinggi.

Peak oksidasi Au terhadap metanol ditunjukkan pada $E = 0$ V hingga $-0,2$ V. sedangkan pada jurnal milik Yan dkk, 2011 dan Wang dkk, 2013 *peak* oksidasi Au pada $E = 0,3$ V hingga $0,4$ V. Sehingga pada penelitian ini mengalami pergeseran *peak* ke kiri yang berarti reaksi dapat terjadi pada energi yang lebih rendah.



Gambar 4.34 Hasil uji CV untuk CC/G dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 menit menggunakan elektrolit KOH-metanol 1 M.

Tabel 4.4 Data hasil uji CV dengan KOH-metanol 1 M pada elektrokatalis CC/G dengan variasi *sputter time* Au 10, 15 dan 20 menit.

Material	I_f (A/cm ²)	I_b (A/cm ²)	I_f/I_b
CC/G Au 10	0,00342	-0,00223	1,53
CC/G Au 15	0,00179	-0,00049	3,67
CC/G Au 20	0,00265	-0,00134	1,99

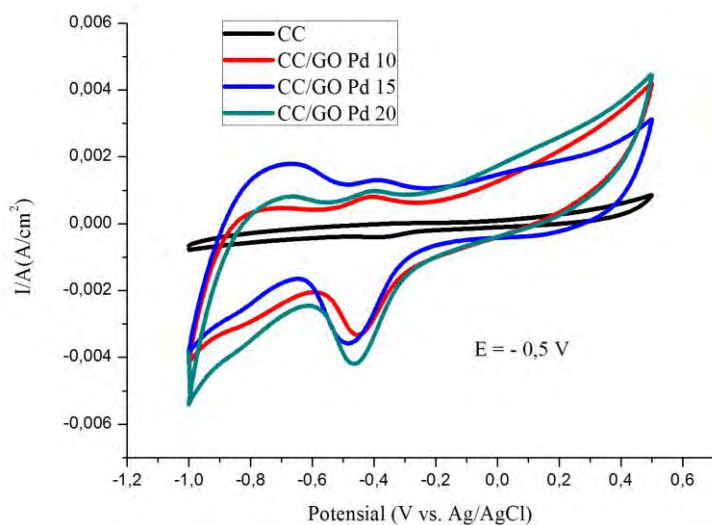
Hasil perhitungan I_f/I_b dapat digunakan untuk mengestimasi sifat toleransi teracuni oleh gas CO. I_f/I_b yang tinggi menunjukkan lebih efektif untuk menghilangkan jenis-jenis racun dari permukaan katalis dan menunjukkan toleransi yang lebih baik terhadap *CO gas poisoned* (Ren dkk, 2015).

Pada material *carbon cloth/graphene* yang di sputter Au, menunjukkan kemampuan mengoksidasi metanol. Pola hasil I_f/I_b CC/G sebanding dengan CC/GO sputter Au dimana I_f/I_b tertinggi ditunjukkan variasi *sputter time* 15 menit 3,67 lalu

sputter time 20 menit dan 10 menit. Jadi sampel GO dan G masing-masing memiliki nilai yang sama yaitu 3,67.

Selain itu dari grafik uji CV juga menunjukkan bahwa proses deposisi *graphene* oksida dan *graphene* lalu disputter Au menunjukkan pengaruh elektrokimia yang luar biasa. Dari *carbon cloth* yang tidak mampu mengoksidasi metanol lalu ditambah *graphene* oksida dan *graphene* memiliki luasan yang lebih besar (mampu menyimpan muatan lebih banyak), lalu sampel disputter Au yang mana menjadi dapat mengoksidasi metanol dan dapat di aplikasikan sebagai elektrokatalis.

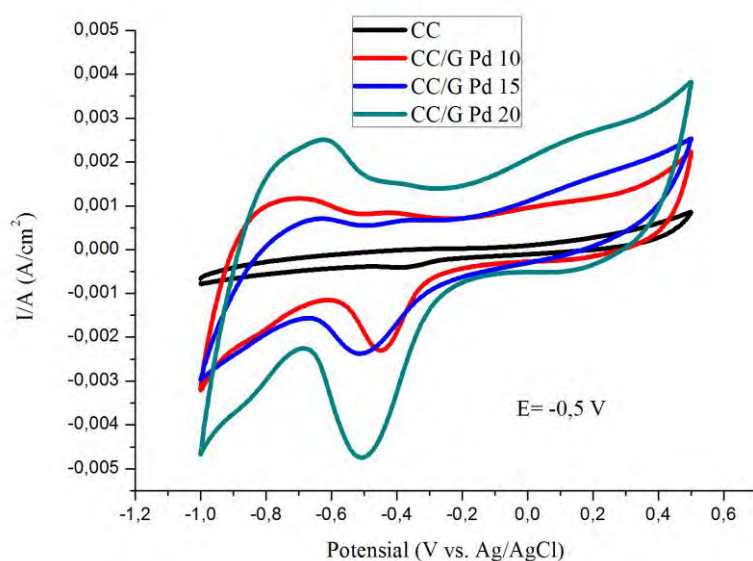
4.3.3 Uji Cyclic Voltammetry (CV) Elektrokatalis *Graphene* Oksida/Pd dan *Graphene*/Pd.



Gambar 4.35 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi *sputter time* Pd 10,15 dan 20 menit elektrolit 1 M KOH.

Pada Gambar 4.35 dan Gambar 4.36 dapat dilihat *peak* reduksi Pd pada E = -0,5 V. Sedangkan penelitian yang dilakukan Wang dkk, 2013 menyebutkan bahwa *peak* reduksi Pd pada E = -0,1 V. Penelitian yang ditunjukkan Yang, dkk 2011 menunjukkan *peak* reduksi Pd pada E=0,3 V. penelitian Madhu, dkk 2011 menunjukkan *peak* reduksi Pd pada E=0,3 V. Liu dkk, 2015 menunjukkan *peak*

reduksi Pd/C E=-0,4 V. Sehingga pendekatan *peak* pada penelitian ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Liu, dkk 2015 sebab substrat yang digunakan sama dari bahan karbon, jika Liu menggunakan *graphene* aerogel maka penelitian ini menggunakan *carbon cloth* dan *graphene*. Pada penelitian ini nilai E bergeser ke kiri tidak jauh dari penelitian Liu. Pergeseran ini menunjukkan bahawa untuk terjadinya reaksi membutuhkan energi yang lebih rendah.



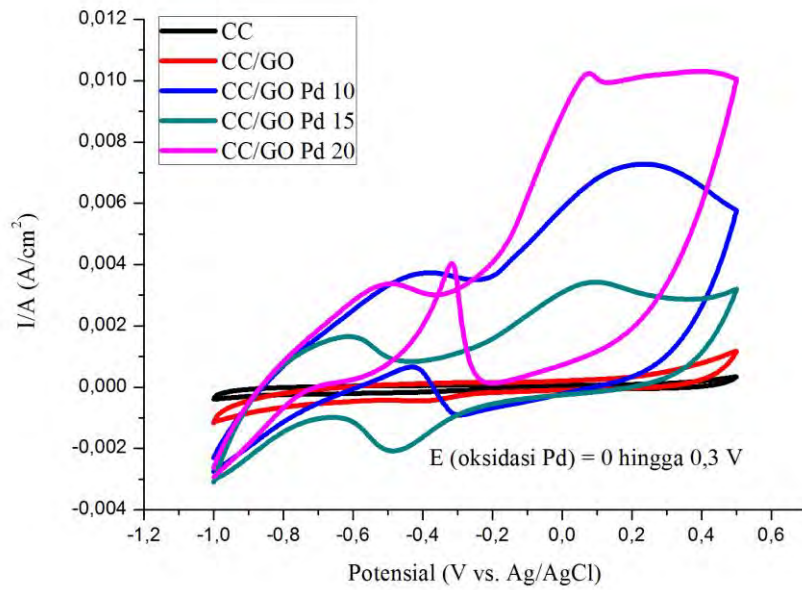
Gambar 4.36 Hasil uji CV CC/G variasi *sputter time* Pd 10, 15, 20 menit dengan elektrolit 1 M KOH.

Tabel 4.5 Data ECSA elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah di *sputter* Pd dengan variasi *sputter time* 10,15 dan 20 menit. Elektrolit KOH 1M.

Material yang terdeposisi	Variasi waktu <i>sputter</i> Pd	Q (C/cm ²)	ECSA (cm ² /mg)
<i>Graphene</i> oksida	10	0,0172	84,2
	15	0,0193	147
	20	0,0206	33,5
<i>Graphene</i>	10	0,0107	52,4
	15	0,0185	60,9
	20	0,02502	49,65

Semua variasi pada penelitian ini menunjukkan *peak* reduksi Pd pada -0,6 hingga -0,4 V. *Peak* reduksi milik Pd menunjukkan *single peak*, berbeda dengan *peak* reduksi Au yang memiliki *multipeak* atau banyak *peak*. Hasil ECSA CC/GO yaitu 147 cm²/mg (15 menit); 84,2 cm²/mg (10 menit); 33,5 cm²/mg (20 menit). Kemudian hasil ECSA CC/G yaitu 60,9 cm²/mg (15 menit); 52,4 cm²/mg (10 menit); 49,65 cm²/mg (20 menit).

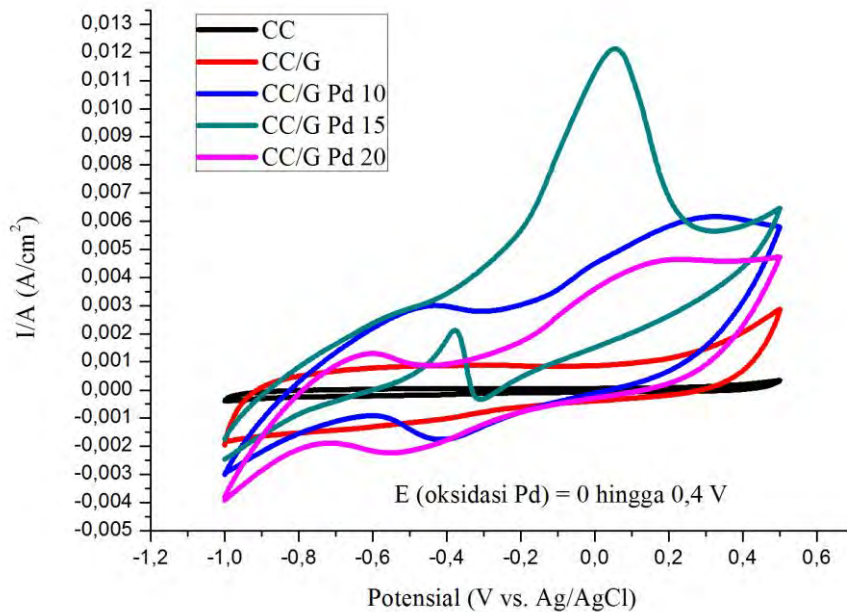
Nilai ECSA tertinggi dimiliki variasi *sputter time* Pd 15 menit. Pola hasil material elektrokatalis CC/GO dan CC/G berbanding lurus, dimana variasi *sputter* tertinggi 15, 10 lalu 20 menit. Jadi *sputter time* paling optimal adalah 15 menit. Sebab *sputter time* tidak berbanding lurus dengan penambahan masa, dimana lama waktu menunjukkan masa paling banyak. Sebab pada proses *sputter* Pd digunakan tegangan hingga 1000 V dan daya hingga 300 W. Sehingga *sputter time* 20 menit (terlalu lama) bisa menyebabkan terjadi pemanasan yang berlebihan dan material Pd yang harusnya sudah terdeposit jadi berkurang ikut terbakar. Maka nilai ECSA *sputter time* 10 menit bisa lebih tinggi dari 20 menit, sebab material elektrokatalis belum mengalami *over heating*. Selain itu material target Pd yang digunakan terus menerus untuk *sputter* Pd mengalami penghitaman (hangus). Hal ini menunjukkan bahwa idealnya *sputter* Pd dilakukan tidak lebih dari 15 menit.



Gambar 4.37 Hasil uji CV *carbon cloth/graphene* oksida (CC/GO) dengan variasi *sputter time* Pd 10, 15 dan 20 menit, elektrolit 1 M KOH-metanol.

Tabel 4.6 Hasil uji CV dengan elektrolit KOH-metanol 1 M material CC/GO dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.

Material	I_f (A/cm ²)	I_b (A/cm ²)	I_f/I_b
CC/GO Pd 10	0,00727	0,00066	11,06
CC/GO Pd 15	0,00343	-0,000985	3,5
CC/GO Pd 20	0,01023	0,00399	2,56



Gambar 4.38 Hasil uji CV CC/G dengan variasi *sputter time* 10,15 dan 20 menit, elektrolit yang digunakan KOH-metanol 1 M.

Tabel 4.7 Hasil uji CV dengan elektrolit KOH-metanol 1 M material CC/G dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit.

Material	If(x 10 ⁻³)	Ib(x 10 ⁻³)	If/Ib
CC/G Pd 10	6,16	-0,91	6,8
CC/G Pd15	12,09	2,122	5,7
CC/G Pd 20	4,62	-1,888	2,45

Berbeda pada material elektrokatalis *sputter* Au dimana nilai ECSA dan toleransi terhadap gas CO sebanding. Pada material elektrokatalis *sputter* Pd nilai ECSA dan toleransi terhadap gas CO tidak sebanding, hal ini selain disebabkan ECSA dan oksidasi metanol diberi perlakuan pada elektrolit yang berbeda juga karena memiliki parameter perhitungan yang berbeda. Kalau ECSA dianalisa dari *peak* reduksi Pd sedangkan toleransi terhadap gas CO dianalisa dari *peak* oksidasi Pd. Sehingga tidak ada aturan yang menyatakan hasil ECSA dan toleransi terhadap gas CO harus sebanding. Semuanya tergantung pada karakter material yang diteliti.

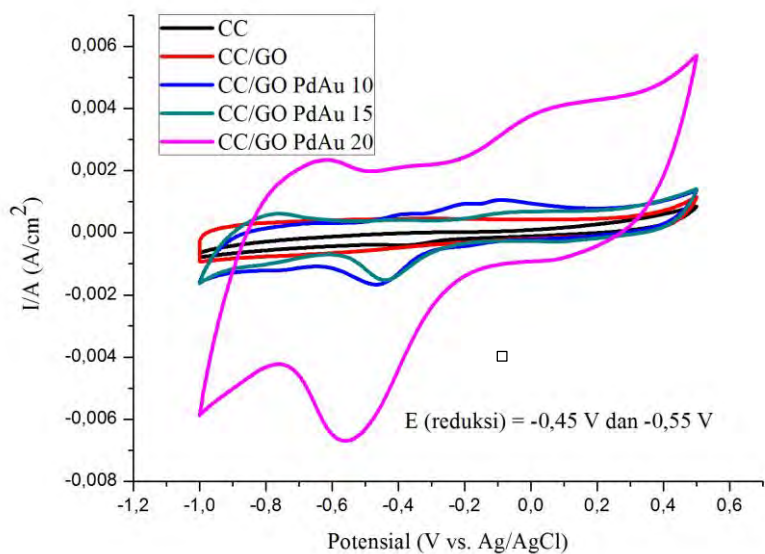
Nilai I_f/I_b material elektrokatalis *carbon cloth/graphene* oksida tertinggi ditunjukkan oleh variasi *sputter time* Pd 10 menit (11,06), lalu 15 menit (3,5) dan paling kecil 20 menit (2,56). Sedangkan nilai I_f/I_b material elektrokatalis *carbon cloth/graphene* tertinggi ditunjukkan oleh variasi *sputter time* 10 menit 6,8; 15 menit 5,7; 20 menit 2,45.

Penelitian yang dilakukan Liu, dkk, 2015 membandingkan material *pure* Pd dengan Pd/*graphene*, yang menunjukkan bahwa *pure* Pd memiliki I_f/I_b lebih rendah dari Pd/*graphene* akibat I_b nya yang sangat tinggi. Sehingga pada penelitian ini menunjukkan komposisi untuk oksidasi metanol yang baik pada variasi CC/GO dan CC/G *sputter* Pd 10 menit. Sebab jika pada variasi *sputter* Pd 20 menit terlalu sedikit Pd yang terdeposisi karena pemanasan pada sampel berlebihan dan pada variasi *sputter* Pd 15 menit terlalu banyak Pd yang terdeposisi (dilihat dari hasil ECSA) jadi tidak mencapai optimum. Selain itu bisa juga disebabkan karena *graphene* dan *graphene* oksida yang terdeposisi pada sampel *sputter* 10 menit paling tinggi sehingga I_f/I_b nya paling tinggi.

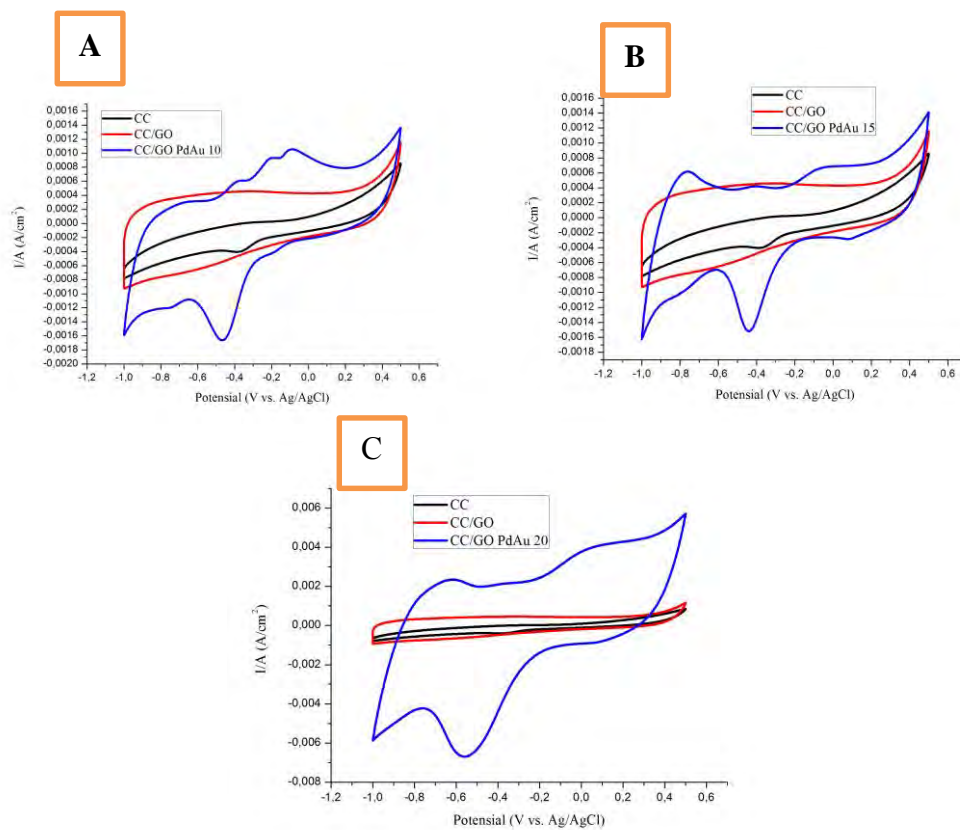
4.3.4 Pengujian *Cyclic Voltammetry* (CV) elektrokatalis *graphene* oksida/PdAu dan *graphene*/PdAu

Pengujian CV pada elektrokatalis CC/GO dan CC/G yang telah *disputter* PdAu dilakukan dengan 2 larutan yang berbeda KOH dan KOH-metanol, masing-masing 1 M. Pada pengujian CV dengan elektrolit KOH, grafik uji CV menunjukkan bahwa elektrokatalis CC/GO PdAu 20 memiliki luasan grafik CV yang besar, sehingga menyebabkan grafik terlihat kecil. Gambar ditunjukkan pada Gambar 4.39, sedangkan Gambar 4.40 menunjukkan gambar masing-masing variasi *sputter time* secara terpisah, hanya dibandingkan dengan material bahan baku yaitu *carbon cloth* dan *carbon cloth/graphene* oksida.

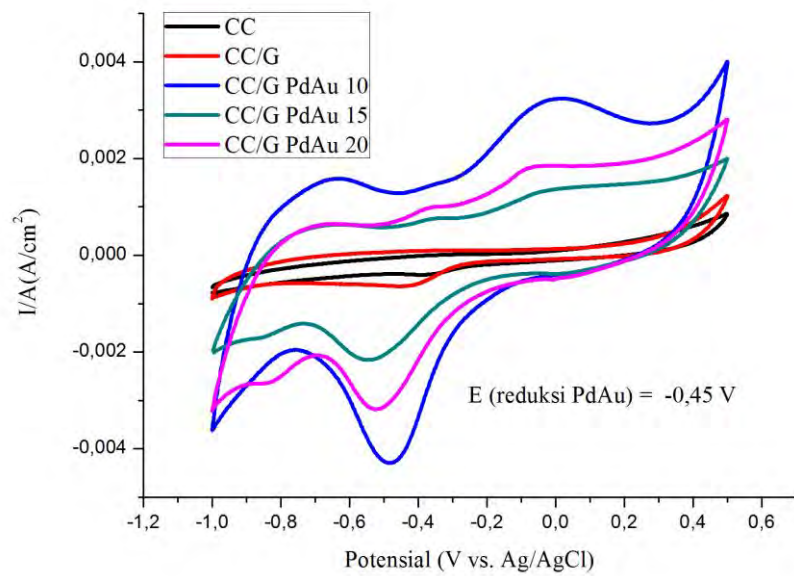
Gambar 4.41 menunjukkan gambar *carbon cloth/graphene* yang di *sputter* oleh PdAu dengan variasi sama yaitu 10,15 dan 20 menit. Grafik terluas dimiliki oleh variasi CC/G PdAu 20, sehingga untuk melihat grafik variasi yang lain jika dipisahkan dengan variasi CC/G PdAu 20 ditunjukkan oleh Gambar 4.42.



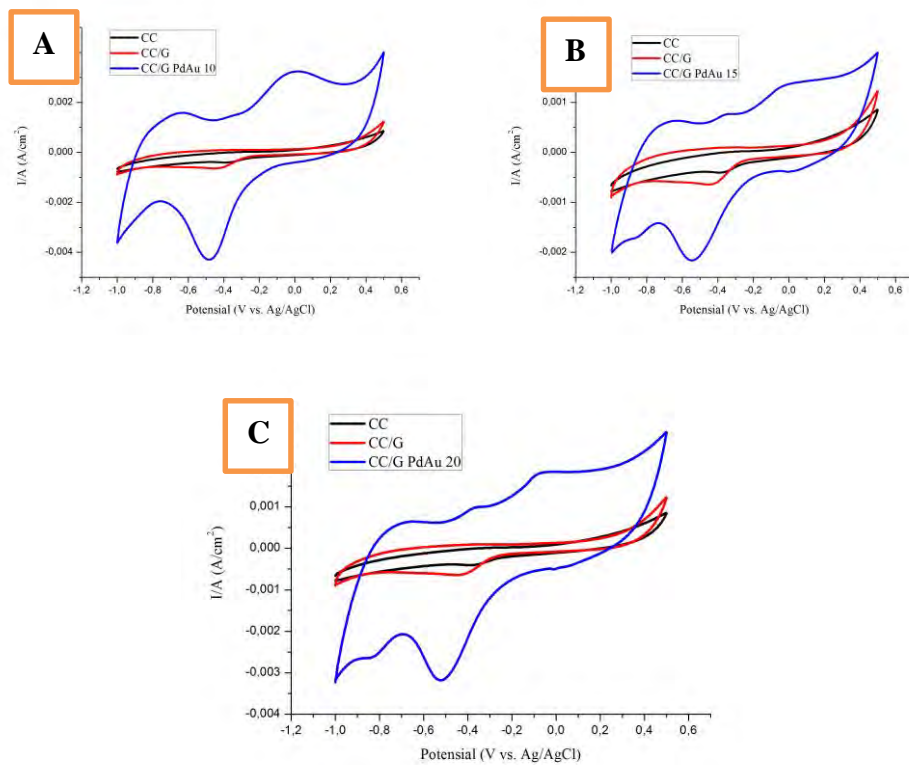
Gambar 4.39 Grafik uji CV material CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu 10,15 dan 20 menit,



Gambar 4.40 Hasil uji CV elektroda CC/GO dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit



Gambar 4.41 Hasil uji CV elektroda CC/G dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit



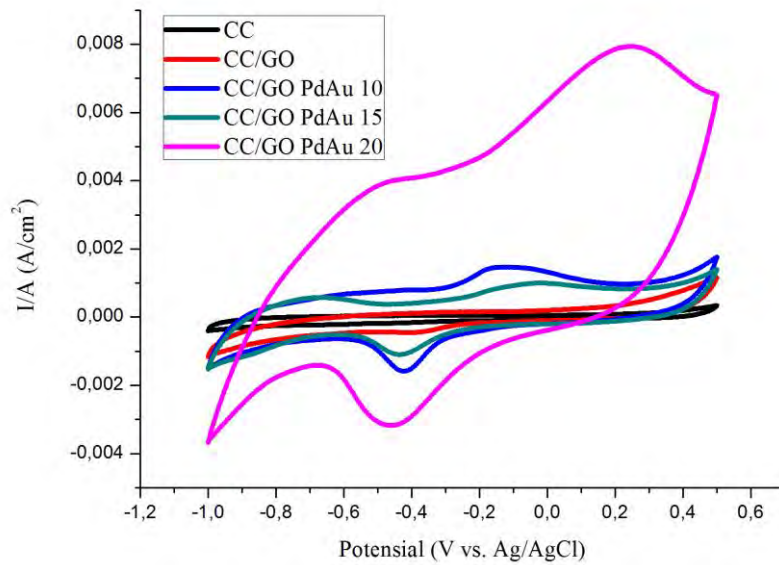
Gambar 4.42 Hasil uji CV elektroda CC/G dengan variasi *sputter time* PdAu (A)10 (B)15 (C)20 menit

Peak reduksi berada pada $\pm 0,45$ V, dimana merupakan perpaduan antara *peak* milik Au (0,4 V) dan Pd (0,5 V). Jadi pada penelitian ini *peak* reduksi PdAu berada diantara dan pada nilai *peak* milik Pd dan milik Au.

Tabel 4.8 Data perhitungan ECSA dengan *sputter* PdAu

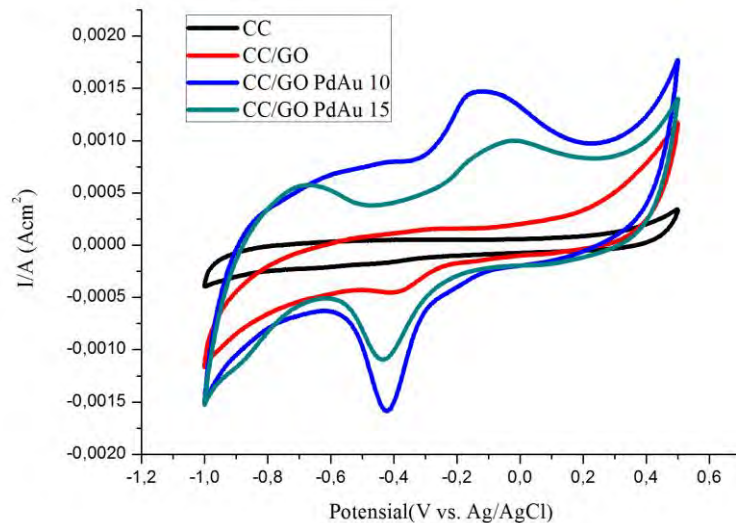
Material yang terdeposisi	Variasi <i>sputter</i> Pd/Au	Q (C/cm ²)	[PdAu] mg/cm ²	ECSA (cm ² /mg)
<i>Graphene</i> oksida	10	0,00948	0,000536	17,7
	15	0,0152	0,000583	26
	20	0,0517	0,001139	45,4
<i>Graphene</i>	10	0,03	0,001234	24,3
	15	0,0165	0,000543	30,3
	20	0,0376	0,00089	42,2

Gambar 4.39 hingga Gambar 4.42 menunjukkan gambar hasil uji CV pada material elektrokatalis yang *disputter* dengan PdAu. Pada elektrokatalis *sputter* PdAu, hasil ECSA ditunjukkan pada range yang lebih sempit dan nilainya lebih rendah dibanding hasil ECSA elektrokatalis *sputter* Au dan Pd. Sebab komposisi material bimetalik sangat berpengaruh, seperti yang dilakukan oleh Gudarzi dkk, 2015 yang menggunakan variasi komposisi PdAu untuk mencari nilai optimum. Pada penelitian ini diperoleh data bahwa ECSA tertinggi pada variasi *sputter* PdAu 20 menit lalu 15 dan 10 menit. Perbedaan nilai ECSA juga tidak jauh. Jadi dari penelitian ini dapat diketahui pada proses *sputter* PdAu dengan PVD milik BATAN Yogyakarta, dengan metode *sputter* lapisan tumpuk Au lalu lapisan Pd (bimetal) menunjukkan bahwa komposisi terbaik pada *sputter time* PdAu 20 menit yaitu 45,4 cm²/mg (CC/GO) dan 42 cm²/mg (CC/G).



Gambar 4.43 Hasil uji CV CC/GO dengan variasi *sputter time* Pd/Au 10,15 dan 20 menit dengan elektrolit 1 M KOH-metanol.

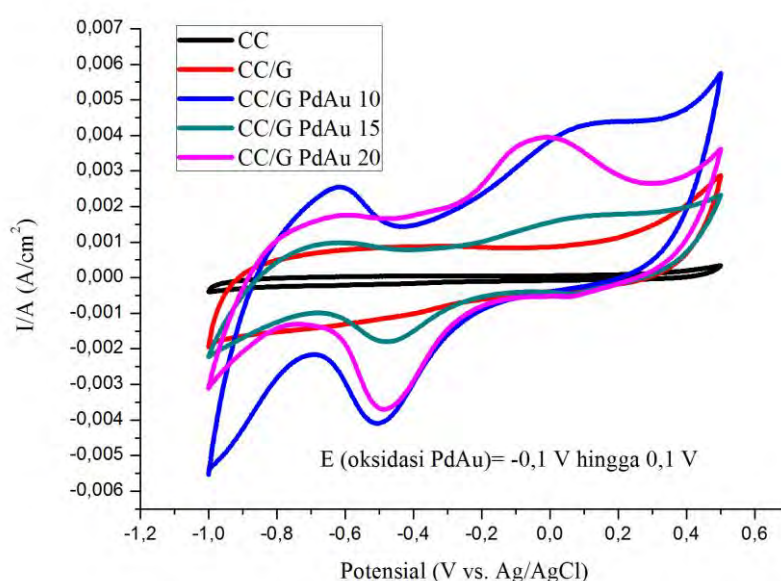
Karena range yang terlalu luas maka agar lebih jelas dapat dilihat pada Gambar 4.44 sampel elektrokatalis CC/GO PdAu 10 dan 15 menit.



Gambar 4.44 Hasil uji CV material CC/GO dengan variasi *sputter time* 10 dan 15 menit, elektrolit KOH-metanol 1 M.

Tabel 4.9 Hasil uji CV material CC/GO dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit menggunakan elektrolit KOH-metanol 1 M.

Material	I_f (A/cm ²)	I_b (A/cm ²)	I_f/I_b
CC/GO PdAu 10	0,001469	-0,000628	2,34
CC/GO PdAu 15	0,0009986	-0,0005	1,96
CC/GO PdAu 20	0,007934	-0,00141	5,62



4.45 Hasil uji CV material CC/G dengan variasi *sputter time* 10, 15 dan 20 menit, elektrolit KOH-metanol 1 M.

Tabel 4.10 Data I_f/I_b elektrokatalis CC/G variasi *sputter time* PdAu 10, 15 dan 20 menit elektrolit KOH metanol 1 M

Material	I_f (A/cm ²)	I_b (A/cm ²)	I_f/I_b
CC/G PdAu 10	0,00434	-0,00216	2,00
CC/G PdAu 15	0,00175	-0,00099	1,77
CC/G PdAu 20	0,00394	-0,00131	3,01

Uji CV menggunakan elektrolit KOH-metanol 1 M bertujuan untuk menganalisa kemampuan elektrokatalis untuk mengoksidasi metanol yang

ditunjukkan oleh tingginya arus *peak* oksidasi PdAu. Pada variasi CC/GO, *peak* oksidasi tertinggi ditunjukkan oleh variasi *sputter time* 20. Selain I_f nya tinggi, sampel ini juga memiliki I_f/I_b tertinggi yaitu 5. Dimana I_f/I_b menunjukkan tingginya toleransi terhadap gas CO. Sehingga sampel elektrokatalis ini menunjukkan 2 kemampuan yang sejalan, selain mampu mengoksidasi metanol juga memiliki toleransi terhadap gas CO yang tinggi.

Untuk variasi CC/G I_f/I_b dimiliki oleh sampel CC/G PdAu dengan variasi *sputter time* 20 menit sama dengan variasi CC/GO. Sehingga variasi ini menunjukkan 2 kemampuan yang sama tingginya selain memiliki ECSA yang tinggi juga memiliki I_f/I_b yang tinggi pula.

4.4 Ringkasan hasil pengujian

Tabel 4.11 data semua pengujian CV

Sampel	Sifat	
	ECSA (cm ² /mg)	I_f/I_b
CC/GO Au 10	36,7	1,52
CC/GO Au 15	79,4	3,67
CC/GO Au 20	58,9	2,58
CC/G Au 10	31,5	1,53
CC/G Au 15	79,1	3,67
CC/G Au 20	39,9	1,99
CC/GO Pd 10	84,2	11,06
CC/GO Pd 15	147	3,5
CC/GO Pd 20	33,5	2,56
CC/G Pd 10	52,4	6,8
CC/G Pd 15	60,9	5,7
CC/G Pd 20	49,65	2,45
CC/GO PdAu 10	17,7	2,34
CC/GO PdAu 15	26	1,96
CC/GO PdAu 20	45,4	5,62
CC/GO PdAu 10	24,3	2

CC/GO PdAu 15	30,3	1,77
CC/GO PdAu 20	42,2	3,01

Hasil pengujian CV dianalisa dengan sifat elektrokimia ECSA dan I_f/I_b yaitu luas permukaan dari elektrokatalis yang aktif dan toleransi elektrokatalis terhadap *CO poisoning*, dimana gas CO berasal dari sisa reaksi *fuel cell* yang menempel pada permukaan elektrokatalis dan dapat mengurangi kinerjanya. Dari 18 variasi sampel elektrokatalis yang telah disintensis, diketahui bahwa setiap variasi logam Au, Pd dan PdAu diperoleh nilai sifat elektrokimia tertinggi pada sampel dengan deposisi *graphene* oksida.

Hal tersebut disebabkan oleh, *graphene* oksida yang belum stabil dimana GO mudah berikatan untuk memperoleh kestabilannya. Sedangkan *graphene* merupakan material yang sudah stabil sehingga *graphene* tidak mudah berikatan dengan material lain. Sehingga sampel yang terdeposisi GO dapat dengan mudah berikatan dengan ion-ion logam Au, Pd dan PdAu saat proses *sputter*. Selain itu, juga disebabkan oleh gugus hidrosil, gugus oksida dll pada GO, dimana gugus-gugus tersebut membantu proses transfer ion sehingga proses transfer ion tersebut menjadi lebih cepat.

Pola hasil pengujian ECSA dengan nilai tertinggi CC/GO Au 15 menit, CC/GO Pd 15 menit dan CC/GO PdAu 20 menit. Pada elektrokatalis *sputter* Au dan Pd optimum pada 15 menit, sebab sampel ketika *disputter* 20 menit mengalami over heating sehingga sebagian Pd telah hilang (*sputter* menghasilkan termal). Sedangkan elektrokatalis *sputter* PdAu maksimal pada 20 menit. Sedangkan nilai I_f/I_b memiliki pola hasil nilai tertingginya 15 menit pada *sputter* Au, 10 menit pada *sputter* Pd dan 20 menit pada *sputter* PdAu. Sehingga dapat dianalisa bahwa semakin tinggi persentase Au yang terdeposisi semakin tinggi nilai ECSA dan I_f/I_b nya, jadi semakin tinggi persentase Au maka sifat elektrokimia semakin baik. Sedangkan pada Pd ECSA tertinggi pada *sputter time* 15 menit dan I_f/I_b tertinggi 10 menit, seperti Liu dkk, 2015 yang menyatakan *pure* Pd I_f/I_b lebih rendah dibanding Pd/*graphene*. jadi variasi *sputter time* 10 menit optimum karena persentase Pd nya rendah. Sedangkan PdAu merupakan perpaduan dari sifat Pd dan Au, dimana optimum pada 20 menit.

Dari ketiga variasi logam X yaitu Au, Pd dan PdAu diketahui bahwa logam yang paling baik diaplikasikan sebagai elektrokatalis adalah logam Pd (CC/GO Pd) dengan nilai ECSA $147 \text{ cm}^2/\text{mg}$ dan I_f/I_b nya 11,06. Karena mengalami peningkatan sifat elektrooksidasi yang paling tinggi dengan nilai ECSA dan I_f/I_b maksimal.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

LAMPIRAN

Lampiran 1 : Perhitungan membuat 1 M KOH 1 liter

$$M = \frac{m}{m \times V}$$

Dimana,

M : molaritas (Molar)

m : massa (gram)

V : volume (liter)

1 M = m : (56,1 x 1 liter)

1 M = m : 56,1

masa = 56,1 gram

Jadi untuk membuat 1 liter KOH 1 M membutuhkan 56,1 gram serbuk KOH.

Lampiran 2 : Perhitungan membuat 1 liter KOH-metanol 1 M.

Diketahui metanol

Mr : 32,04 gr/mol

Masa/volum (densitas) : 0,792 kg/l atau 792 gr/l

Molaritas metanol

$$\begin{aligned} [M] \text{ metanol} &= m/V : mr \\ &= 792 \text{ gr/l} : 32,04 \text{ gr/mol} \end{aligned}$$

$$[M] \text{ metanol} = 24,7191 \text{ mol/l}$$

Membuat KOH-metanol 1 M dengan volum 1 liter

KOH = metanol

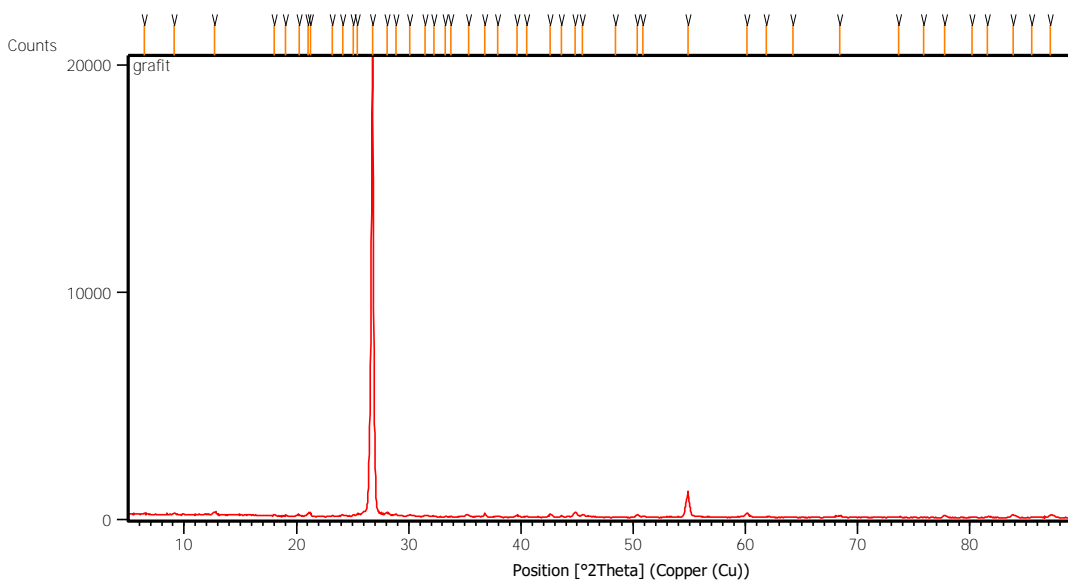
$$M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$$

$$1 \times 1 = 24,7191 \times V_2$$

$$V_2 = 1 / 24,7191$$

$$V_2 = 0,04045 \text{ liter metanol dalam 1 liter KOH-metanol.}$$

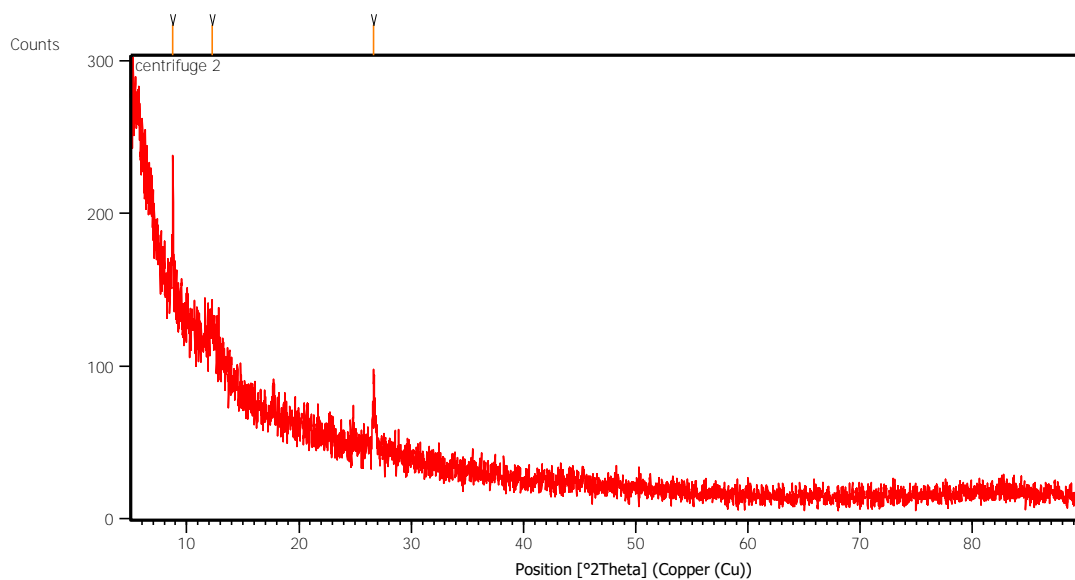
Lampiran 3 : XRD grafit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
6.4225	25.59	0.4015	13.76248	0.13
9.0967	54.74	0.2007	9.72170	0.28
12.7081	114.47	0.3346	6.96597	0.58
18.0046	49.39	0.1673	4.92693	0.25
19.0380	24.08	0.2007	4.66176	0.12
20.2173	62.83	0.2342	4.39241	0.32
21.0657	148.72	0.2007	4.21740	0.75
21.2429	177.16	0.1004	4.18262	0.89
23.2074	29.37	0.2007	3.83282	0.15
24.1171	66.39	0.2007	3.69027	0.33
25.0925	92.60	0.1004	3.54899	0.47
25.4441	151.85	0.1004	3.50073	0.76
26.7887	19869.21	0.2007	3.32800	100.00
28.1146	172.91	0.2676	3.17399	0.87
28.8632	114.02	0.1338	3.09335	0.57
30.0756	87.22	0.2676	2.97135	0.44
31.4546	58.89	0.2676	2.84417	0.30
32.2809	39.35	0.2007	2.77322	0.20
33.2578	20.21	0.2007	2.69397	0.10
33.7430	26.27	0.2007	2.65633	0.13
35.3260	92.60	0.2342	2.54085	0.47
36.7693	175.00	0.0502	2.44436	0.88
37.9621	33.89	0.6022	2.37025	0.17
39.6476	76.58	0.2007	2.27329	0.39
40.5355	38.56	0.2676	2.22552	0.19
42.6193	125.59	0.2007	2.12141	0.63
43.5860	52.91	0.2007	2.07657	0.27
44.8477	222.59	0.3011	2.02104	1.12
45.4921	104.44	0.2007	1.99390	0.53
48.4429	17.93	0.3346	1.87912	0.09
50.3490	126.72	0.1004	1.81237	0.64
50.8863	50.99	0.2007	1.79448	0.26

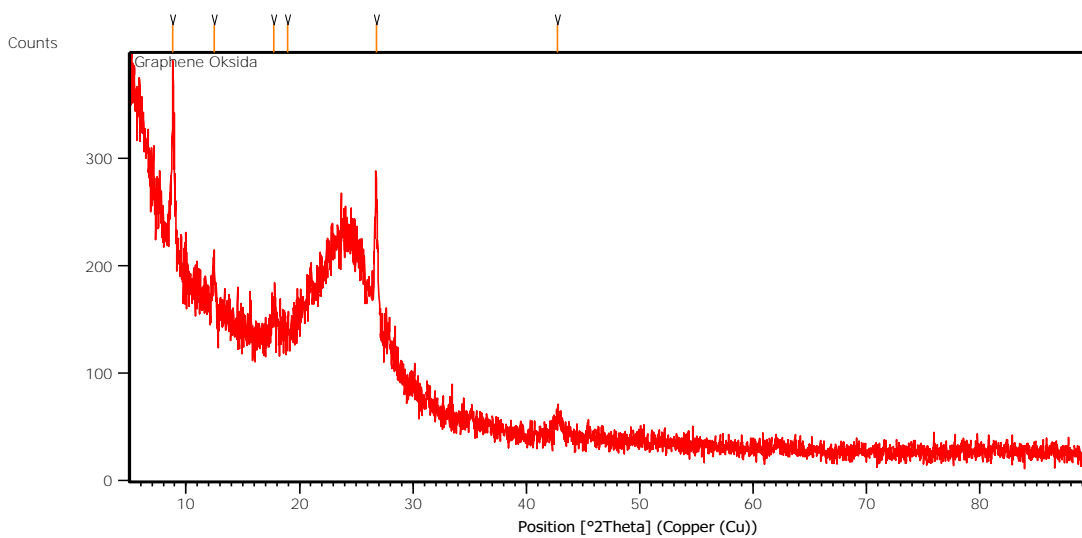
54.8801	1103.71	0.1004	1.67297	5.55
60.1268	171.56	0.2007	1.53893	0.86
61.8264	24.60	0.5353	1.50064	0.12
64.2187	16.11	0.4015	1.45039	0.08
68.4198	69.47	0.2676	1.37122	0.35
73.6741	28.25	0.2676	1.28588	0.14
75.8885	20.11	0.3346	1.25377	0.10
77.7290	80.34	0.2342	1.22862	0.40
80.1509	19.35	0.4015	1.19749	0.10
81.5331	35.52	0.3346	1.18065	0.18
83.8232	148.96	0.1338	1.15413	0.75
85.5213	32.30	0.2676	1.13551	0.16
87.1541	122.90	0.3346	1.11839	0.62

Lampiran 4 : grafit oksida



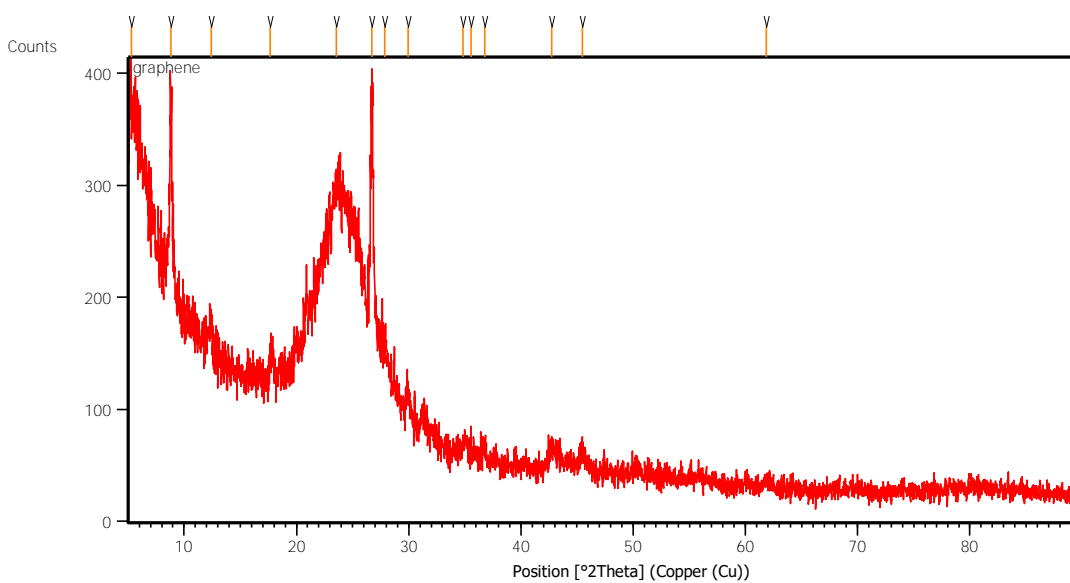
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.7653	81.98	0.1004	10.08852	100.00
12.2804	18.48	0.8029	7.20757	22.55
26.6701	38.71	0.2676	3.34253	47.22

Lampiran 5 : *graphene oksida*



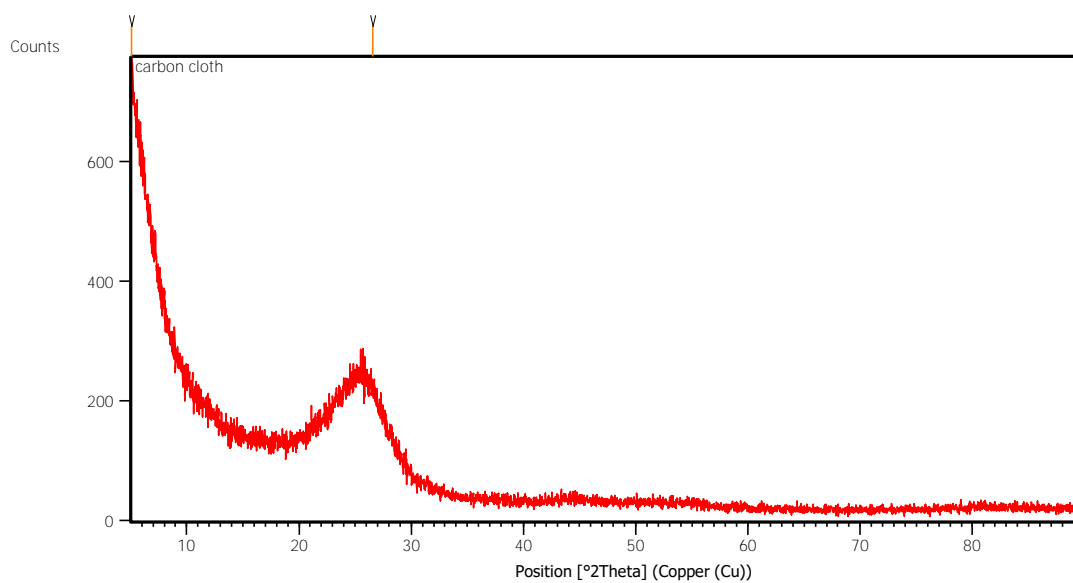
Pos. [$^{\circ}2\text{Th.}$]	Height [cts]	FWHM Left [$^{\circ}2\text{Th.}$]	d-spacing [\AA]	Rel. Int. [%]
8.8306	147.17	0.1338	10.01406	100.00
12.5109	31.15	0.3346	7.07534	21.16
17.7180	24.60	0.4015	5.00599	16.71
18.9513	13.51	0.1338	4.68290	9.18
26.7559	112.12	0.2007	3.33200	76.18
42.7550	17.57	0.5353	2.11499	11.94

Lampiran 6 : *graphene*



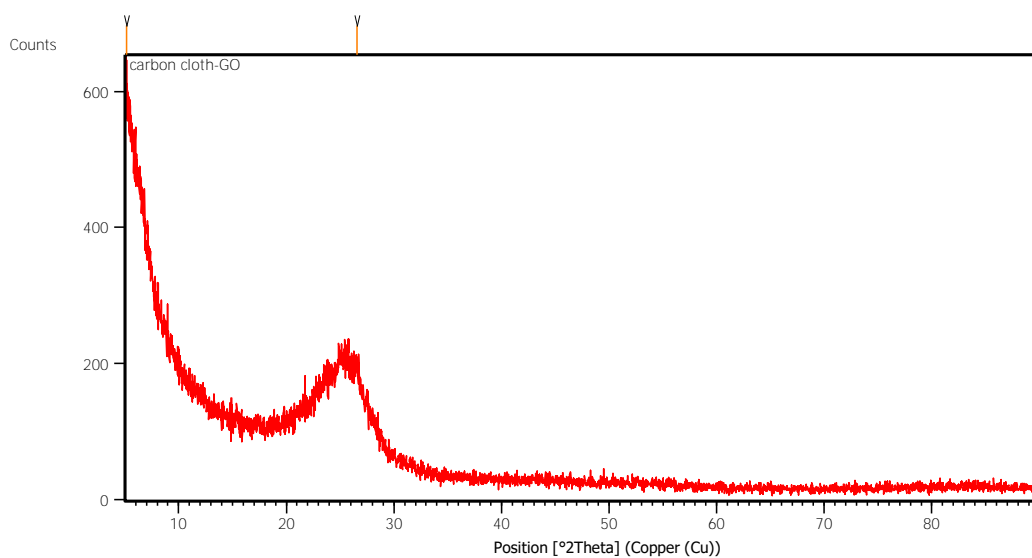
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.2844	93.96	0.5353	16.72346	45.14
8.8194	157.61	0.2007	10.02673	75.71
12.4095	24.65	0.2676	7.13289	11.84
17.6692	21.43	0.3346	5.01968	10.29
23.5617	52.86	0.5353	3.77598	25.39
26.7283	208.17	0.1673	3.33538	100.00
27.8433	12.18	0.5353	3.20430	5.85
29.9449	18.38	0.4015	2.98403	8.83
34.8415	10.23	0.8029	2.57505	4.92
35.5426	27.97	0.0502	2.52586	13.44
36.7655	9.85	0.4015	2.44460	4.73
42.7142	18.89	0.6691	2.11691	9.07
45.4764	18.96	0.4015	1.99456	9.11
61.8687	6.51	0.8029	1.49971	3.13

Lampiran 7 : *carbon cloth*



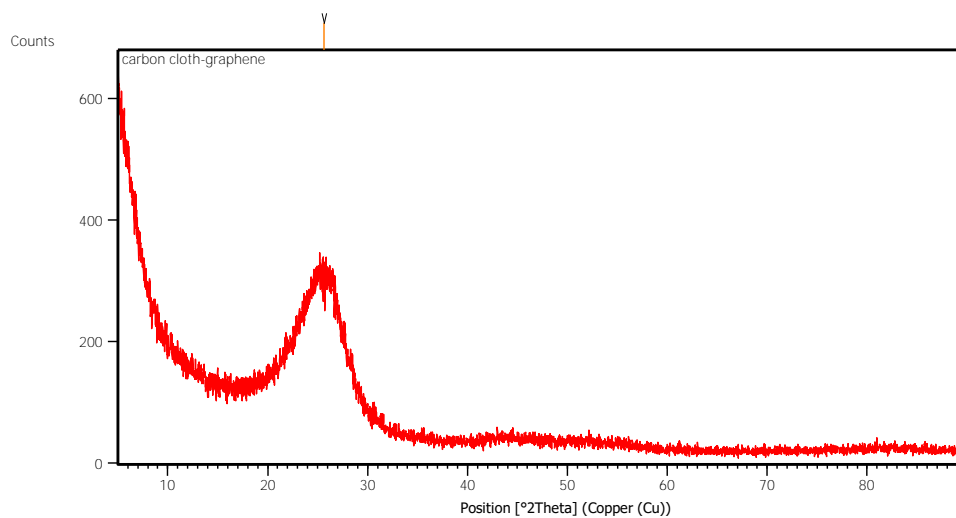
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.0928	206.78	0.5353	17.35231	100.00
26.5510	28.06	0.6691	3.35725	13.57

Lampiran 8 : *carbon cloth/graphene oksida*



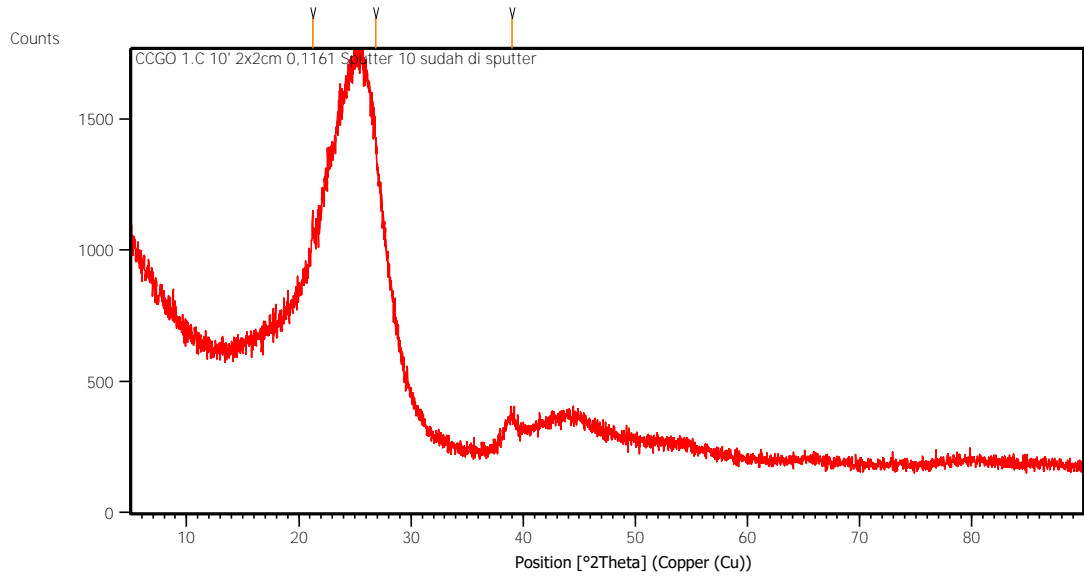
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.1842	152.70	0.4015	17.04661	100.00
26.5492	28.23	0.5353	3.35747	18.49

Lampiran 9 : *carbon cloth/graphene*



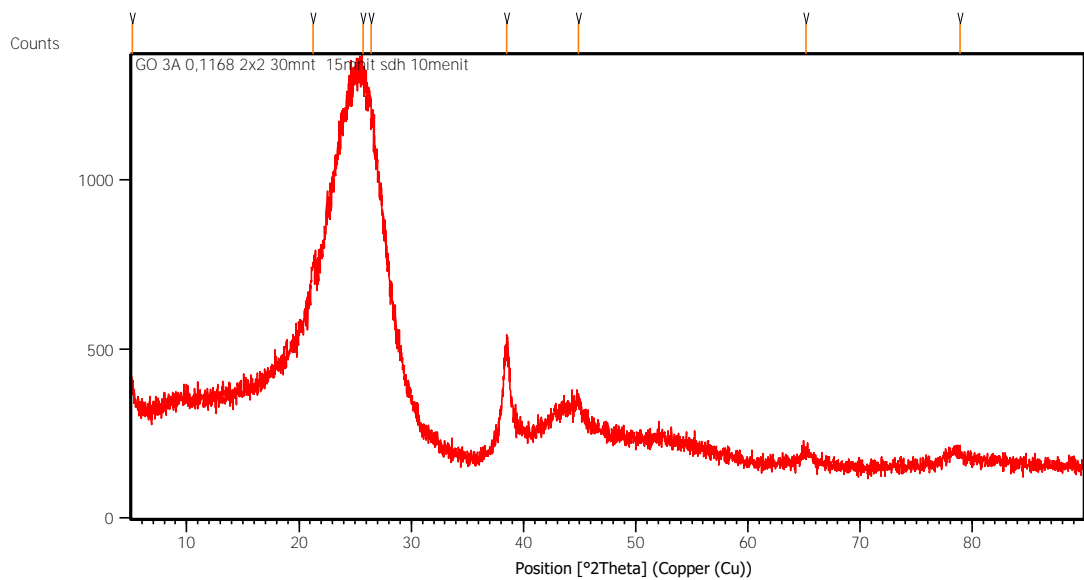
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
25.6582	19.54	0.0900	3.46913	100.00

Lampiran 10 : CC/GO Au 10 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
21.2327	111.13	0.1338	4.18461	61.81
26.8286	179.80	0.4015	3.32314	100.00
38.9954	80.97	0.8029	2.30979	45.03

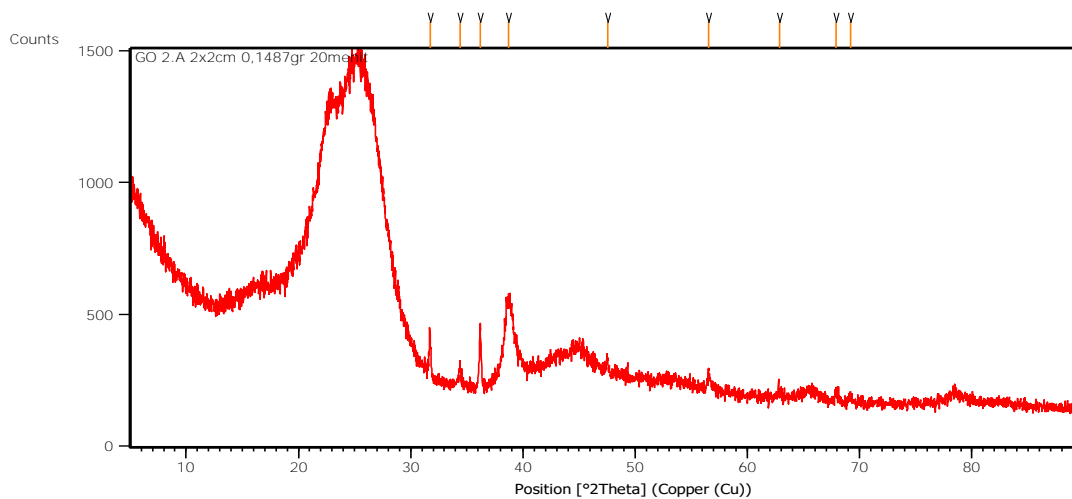
Lampiran 11 : CC/GO Au 15 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.1333	66.56	0.2676	17.21544	22.78
21.2430	57.62	0.3346	4.18259	19.72
25.6895	292.13	0.8029	3.46784	100.00

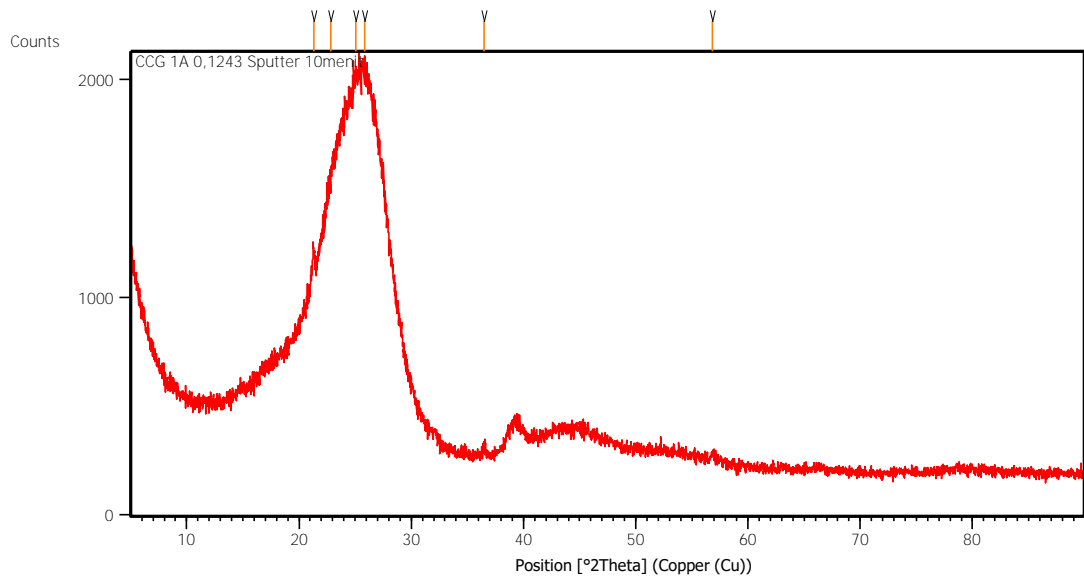
26.4601	286.66	0.4015	3.36858	98.13
38.5344	287.56	0.2007	2.33636	98.44
44.8653	53.58	0.4015	2.02029	18.34
65.1398	27.94	0.9368	1.43209	9.57
78.8632	21.55	0.9368	1.21378	7.38

Lampiran 12 : CC/GO Au 20 menit



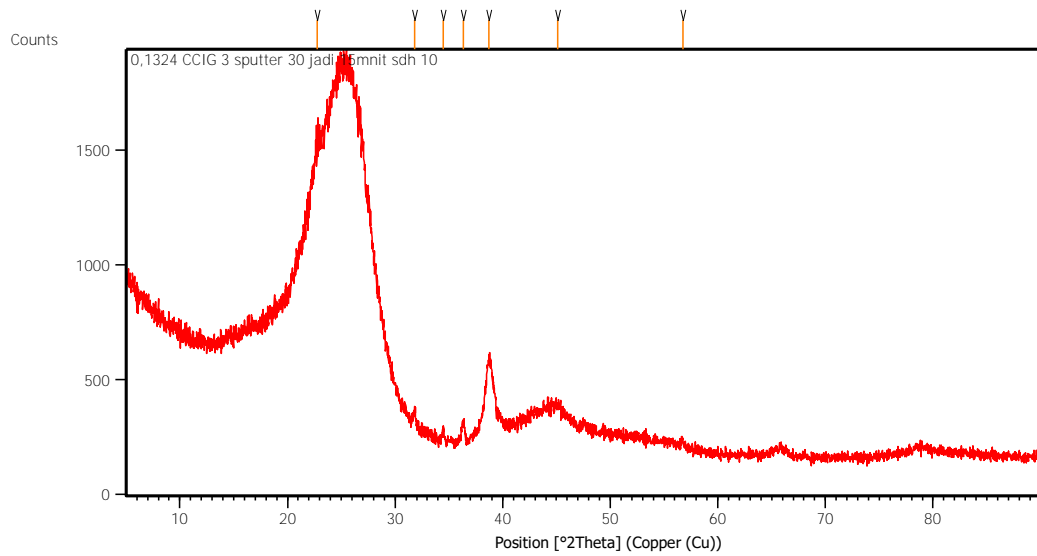
Pos. [$^{\circ}$ 2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [$^{\circ}$ 2Th.]	d-spacing [\AA]	Rel. Int. [%]
31.7124	155.94	0.1673	2.82163	58.12
34.3840	75.07	0.1338	2.60827	27.98
36.1995	235.22	0.1004	2.48151	87.67
38.6858	268.31	0.5353	2.32756	100.00
47.5448	35.54	0.2676	1.91250	13.25
56.5662	65.40	0.2676	1.62704	24.38
62.8393	26.82	0.4015	1.47887	10.00
67.8992	36.48	0.2676	1.38046	13.59
69.2065	24.26	0.4015	1.35755	9.04

Lampiran 13 : CC/G Au 10 menit



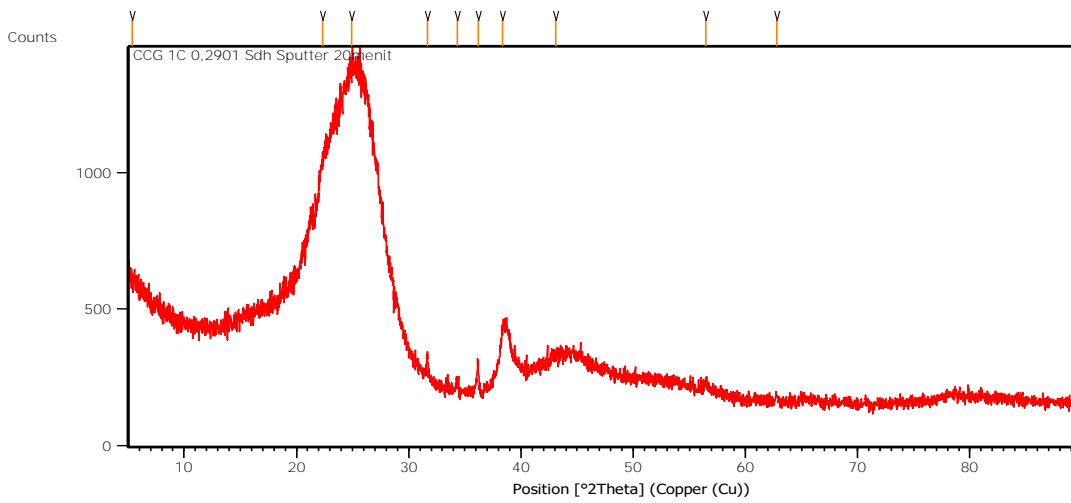
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
21.2927	217.04	0.1004	4.17295	37.29
22.8392	372.04	0.8029	3.89377	63.91
25.0828	582.09	0.6691	3.55034	100.00
25.8193	533.77	0.8029	3.45071	91.70
36.4896	42.34	0.2676	2.46245	7.27
56.8453	28.77	0.3346	1.61971	4.94

Lampiran 14: CC/G Au 15 menit



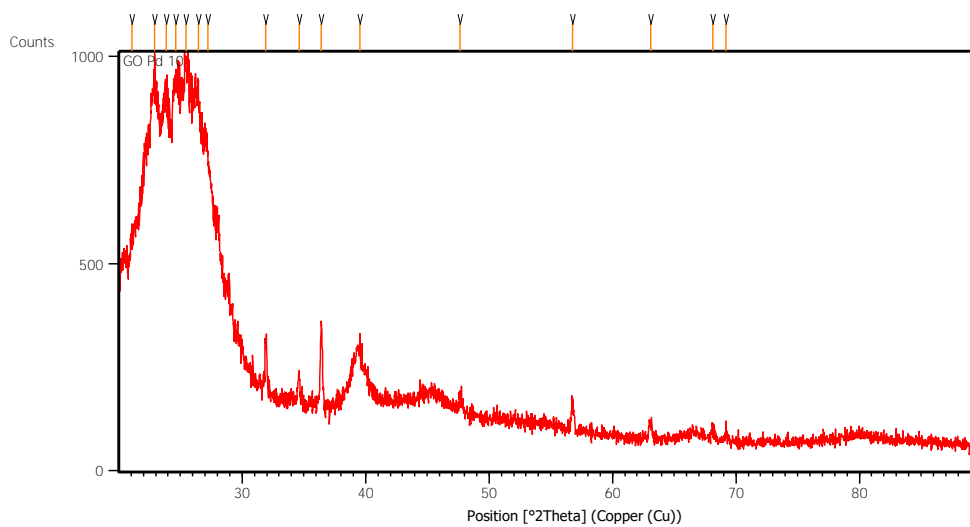
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.7807	99.33	0.6691	3.90363	33.14
31.8393	58.73	0.2007	2.81068	19.59
34.5060	41.13	0.2007	2.59932	13.72
36.3501	71.72	0.2676	2.47157	23.93
38.6974	299.76	0.5353	2.32689	100.00
45.1181	43.54	0.8029	2.00956	14.53
56.7200	29.12	0.4015	1.62299	9.71

Lampiran 15 : CC/G Au 20 menit



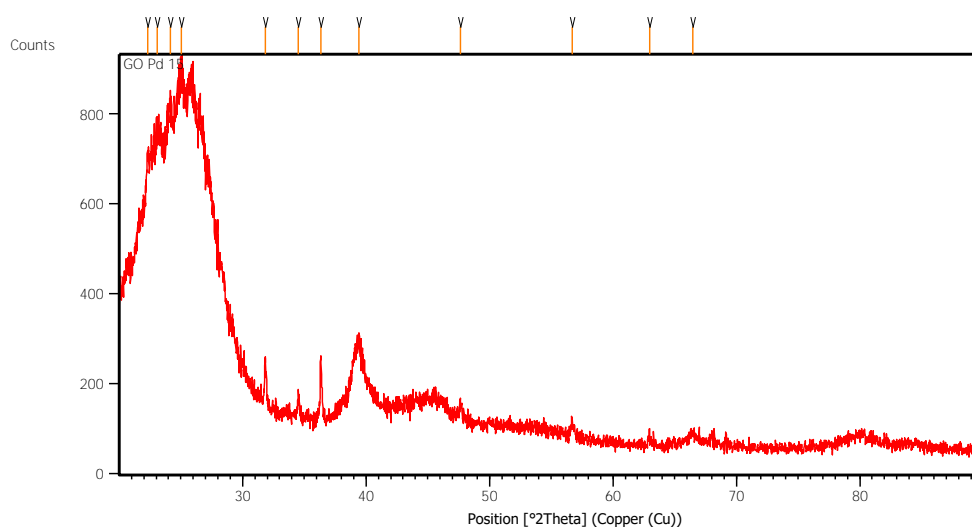
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.3610	86.47	0.8029	16.48472	37.45
22.3113	149.71	0.8029	3.98469	64.84
24.9196	230.90	0.6691	3.57321	100.00
31.6458	72.91	0.1004	2.82742	31.58
34.3363	38.38	0.2676	2.61178	16.62
36.1659	111.81	0.1004	2.48374	48.42
38.3722	184.16	0.3346	2.34586	79.76
43.0704	20.66	0.8029	2.10023	8.95
56.4872	42.32	0.2007	1.62913	18.33
62.7691	25.84	0.2007	1.48035	11.19

Lampiran 16 : CC/GO Pd 10 menit



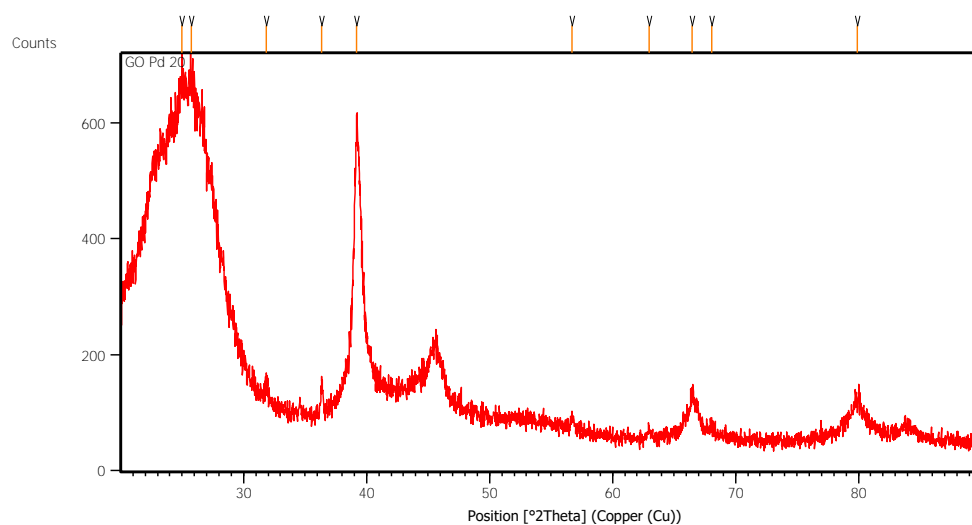
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
21.0981	143.59	0.4015	4.21099	26.02
22.9050	531.23	0.2676	3.88273	96.26
23.8432	488.85	0.3346	3.73202	88.58
24.6525	517.20	0.2676	3.61131	93.71
25.4645	551.89	0.3346	3.49798	100.00
26.4566	485.74	0.3346	3.36902	88.01
27.2062	344.18	0.4015	3.27786	62.36
31.9289	110.77	0.1673	2.80299	20.07
34.6442	57.09	0.1338	2.58927	10.34
36.4103	194.21	0.1171	2.46763	35.19
39.5666	114.22	0.4684	2.27776	20.70
47.6766	33.02	0.3346	1.90752	5.98
56.7353	67.15	0.1338	1.62259	12.17
63.0676	35.50	0.2007	1.47406	6.43
68.1297	20.33	0.3346	1.37635	3.68
69.1990	34.23	0.1004	1.35767	6.20

Lampiran 17 : CC/GO Pd 15 menit



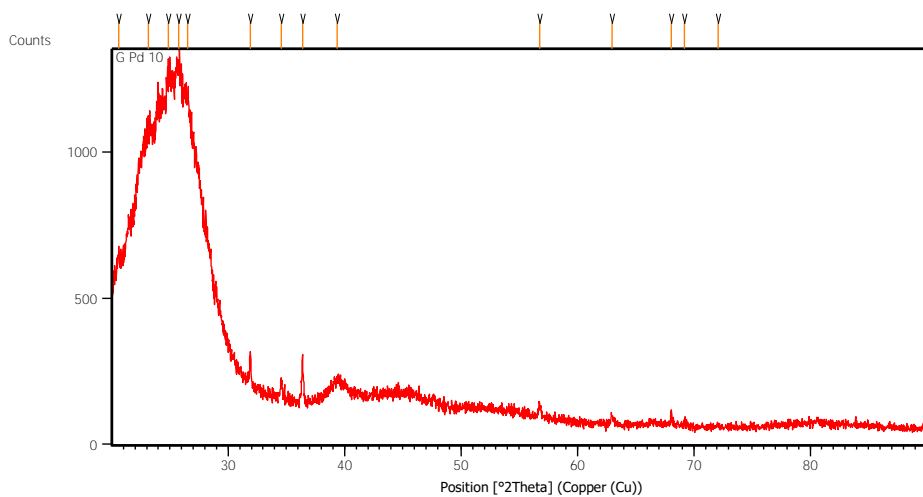
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.3329	171.80	0.1673	3.98088	94.50
23.1125	176.11	0.4015	3.84834	96.87
24.1376	172.43	0.2676	3.68717	94.84
25.0641	181.80	0.4015	3.55294	100.00
31.8602	86.31	0.1338	2.80888	47.48
34.5368	40.14	0.1338	2.59708	22.08
36.3195	131.47	0.0669	2.47359	72.32
39.4033	133.89	0.3346	2.28682	73.65
47.6644	30.27	0.2007	1.90798	16.65
56.7068	34.17	0.2676	1.62334	18.79
62.9502	24.62	0.2007	1.47653	13.54
66.4612	18.93	0.6691	1.40679	10.42

Lampiran 18 : CC/GO Pd 20 menit



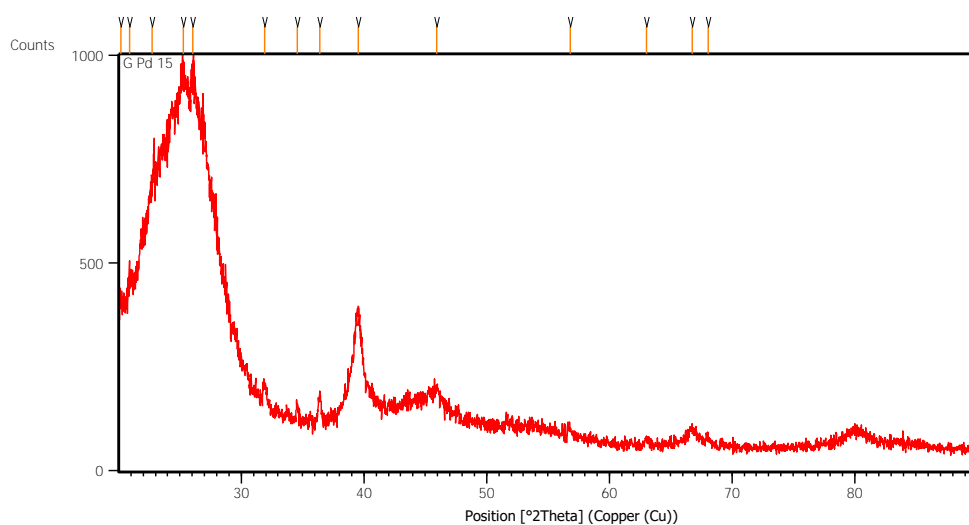
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
24.9943	138.20	0.4015	3.56270	29.74
25.7768	145.80	0.4015	3.45630	31.37
31.8570	34.32	0.2007	2.80915	7.38
36.3653	55.78	0.1673	2.47058	12.00
39.2018	464.77	0.3346	2.29810	100.00
56.7164	18.08	0.2007	1.62309	3.89
62.9956	13.30	0.5353	1.47557	2.86
66.4744	67.44	0.2007	1.40655	14.51
68.0458	19.37	0.4015	1.37784	4.17
79.9142	54.42	0.6691	1.20044	11.71

Lampiran 19 : CC/G Pd 10 menit



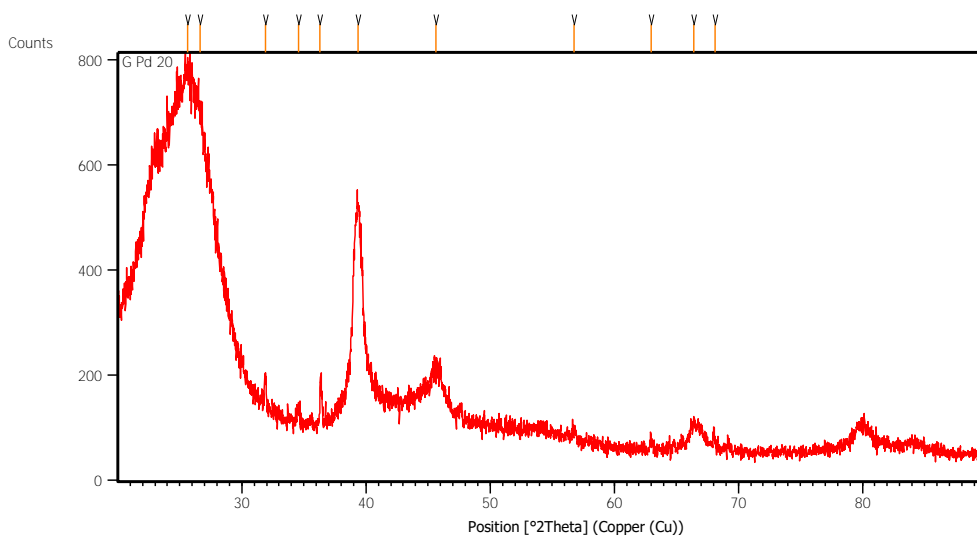
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
20.5856	72.83	0.2007	4.31465	12.77
23.1667	445.64	0.4015	3.83945	78.12
24.8868	557.07	0.3346	3.57785	97.66
25.7502	570.42	0.4015	3.45980	100.00
26.5217	446.27	0.4015	3.36089	78.23
31.9114	103.29	0.1338	2.80449	18.11
34.5730	55.74	0.1338	2.59444	9.77
36.3804	161.45	0.0669	2.46959	28.30
39.3473	51.67	0.9368	2.28994	9.06
56.7623	40.99	0.2007	1.62188	7.19
62.9760	33.56	0.2007	1.47599	5.88
68.0558	37.28	0.1004	1.37767	6.54
69.1911	17.93	0.1004	1.35781	3.14
72.0959	9.18	0.2676	1.31009	1.61

Lampiran 20 : CC/G Pd 15 menit



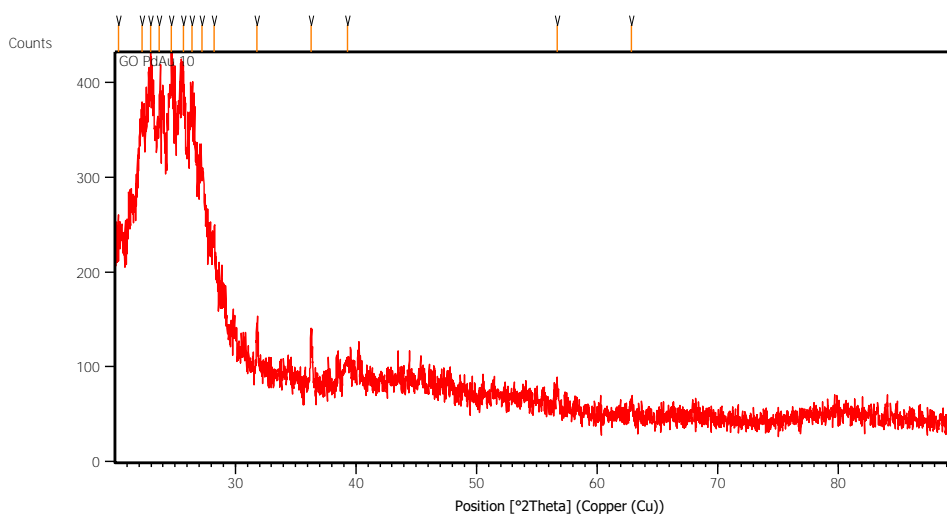
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
20.1808	17.96	0.2007	4.40027	5.18
20.9145	34.59	0.4015	4.24755	9.98
22.7450	198.00	0.4015	3.90968	57.10
25.2811	346.73	0.4015	3.52293	100.00
26.0246	305.28	0.3346	3.42395	88.04
31.9191	38.60	0.2676	2.80383	11.13
34.5747	35.25	0.2007	2.59432	10.17
36.4345	62.38	0.2342	2.46604	17.99
39.5334	222.51	0.4684	2.27959	64.17
45.9395	44.16	0.5353	1.97552	12.74
56.8215	15.22	0.4015	1.62033	4.39
63.0662	15.08	0.4015	1.47409	4.35
66.7605	35.37	0.6691	1.40121	10.20
68.0933	19.37	0.4015	1.37700	5.59

Lampiran 21 : CC/G Pd 20 menit



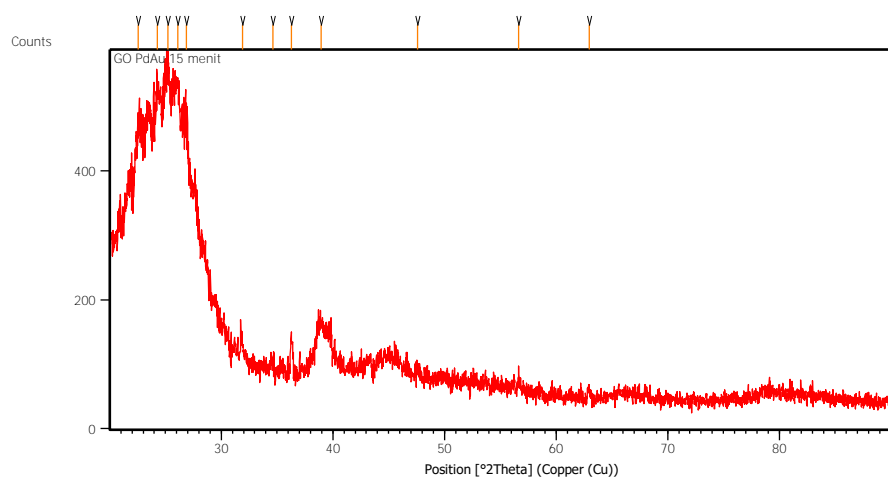
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
25.6383	195.95	0.5353	3.47465	53.89
26.6254	172.33	0.4015	3.34803	47.40
31.9011	52.19	0.1673	2.80537	14.35
34.5518	23.42	0.2007	2.59598	6.44
36.3157	71.28	0.1171	2.47384	19.60
39.3485	363.58	0.2676	2.28988	100.00
45.6244	65.77	0.8029	1.98843	18.09
56.7589	10.61	0.3346	1.62197	2.92
62.9640	21.48	0.2007	1.47624	5.91
66.4386	53.44	0.4015	1.40722	14.70
68.1067	18.89	0.4015	1.37676	5.19

Lampiran 22 : CC/GO PdAu 10 menit



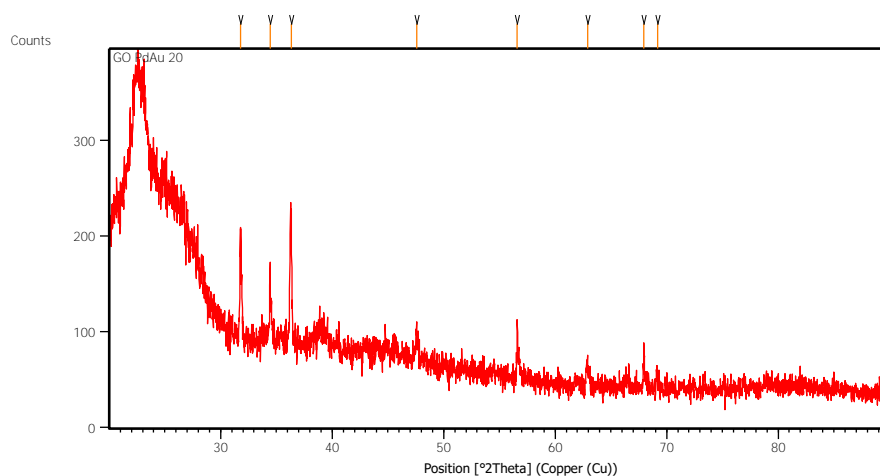
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
20.3064	98.01	0.4015	4.37334	35.87
22.2711	224.68	0.2676	3.99179	82.23
22.9445	270.83	0.3346	3.87613	99.12
23.6984	231.93	0.3346	3.75450	84.88
24.6952	273.24	0.4684	3.60517	100.00
25.6949	257.79	0.4684	3.46713	94.34
26.3834	235.92	0.4684	3.37820	86.34
27.2460	170.10	0.4015	3.27317	62.25
28.2264	102.70	0.2676	3.16167	37.59
31.8021	44.92	0.1338	2.81388	16.44
36.2917	50.65	0.1673	2.47542	18.54
39.3043	20.47	0.4015	2.29235	7.49
56.7130	21.94	0.2007	1.62317	8.03
62.8678	13.91	0.4015	1.47827	5.09

Lampiran 23 : CC/GO PdAu 15 menit



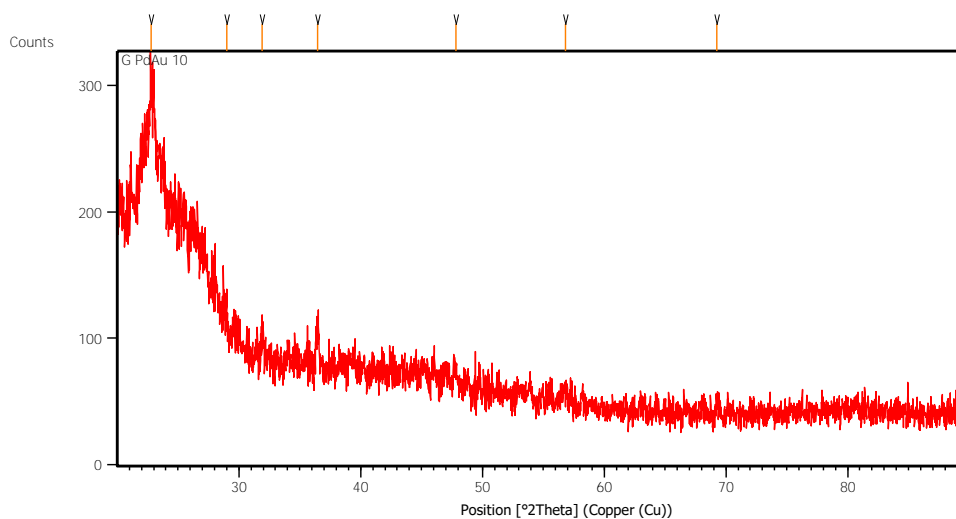
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.5807	158.68	0.4015	3.93775	60.59
24.2789	224.81	0.3346	3.66603	85.84
25.2279	261.88	0.4015	3.53024	100.00
26.1294	232.22	0.4015	3.41045	88.67
26.9030	169.86	0.3346	3.31412	64.86
31.9326	16.58	0.4015	2.80267	6.33
34.6021	14.00	0.3346	2.59233	5.34
36.2623	59.94	0.2007	2.47736	22.89
38.9223	64.19	0.5353	2.31396	24.51
47.5979	13.17	0.4015	1.91049	5.03
56.6704	20.39	0.2007	1.62429	7.79
62.9749	18.45	0.2342	1.47601	7.04

Lampiran 24 : CC/GO PdAu 20 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
31.7852	85.41	0.0836	2.81533	59.95
34.4281	85.19	0.0502	2.60502	59.79
36.3389	142.47	0.1506	2.47231	100.00
47.5994	21.16	0.2007	1.91043	14.85
56.6071	59.23	0.0816	1.62461	41.57
62.8999	34.25	0.1338	1.47759	24.04
67.9570	29.44	0.1004	1.37943	20.66
69.1754	9.60	0.4015	1.35808	6.74

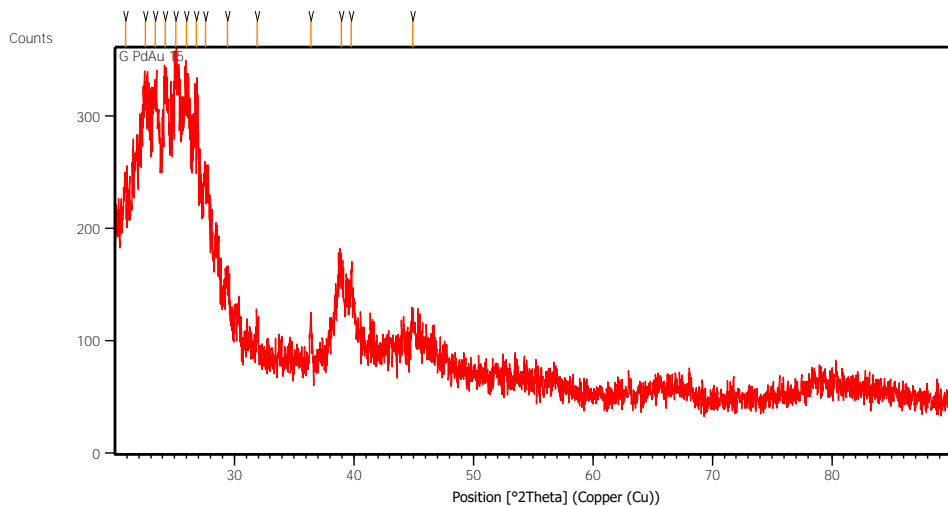
Lampiran 25 : CC/G PdAu 10 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.7813	94.30	0.4015	3.90354	100.00
28.9840	15.08	0.4015	3.08073	15.99
31.9136	18.18	0.2007	2.80430	19.28
36.4551	32.98	0.2676	2.46469	34.97
47.8355	14.14	0.4015	1.90155	15.00

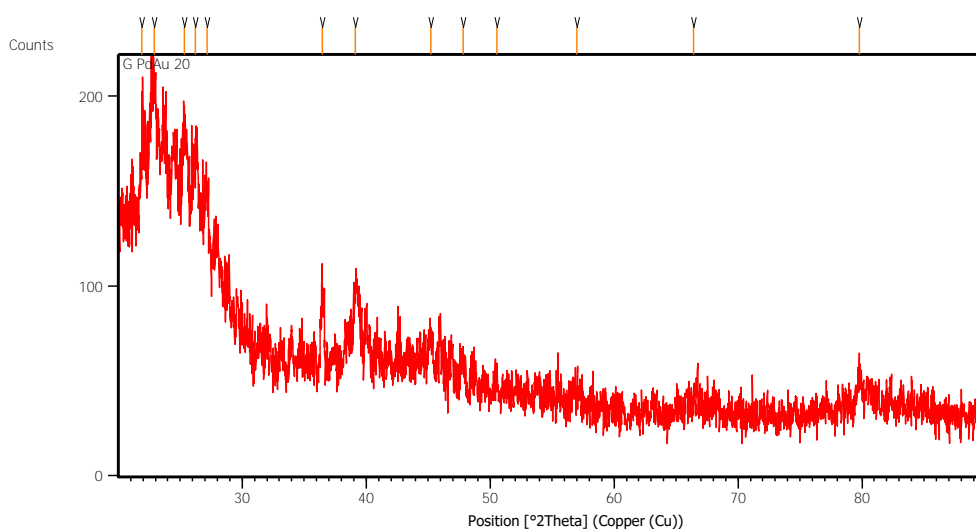
56.8515	9.31	0.4684	1.61955	9.87
69.2470	10.16	0.4015	1.35685	10.78

Lampiran 26 : CC/G PdAu 15 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
20.8940	158.72	0.2342	4.25167	59.08
22.5430	237.92	0.4015	3.94425	88.56
23.4101	243.68	0.4015	3.80009	90.71
24.1944	244.16	0.3346	3.67864	90.89
25.0859	268.64	0.3346	3.54990	100.00
25.9939	242.96	0.3346	3.42792	90.44
26.8357	218.44	0.3346	3.32227	81.31
27.5823	169.15	0.4015	3.23402	62.97
29.4340	65.41	0.3346	3.03464	24.35
31.9145	27.79	0.2007	2.80422	10.35
36.4014	35.63	0.1338	2.46821	13.26
38.9671	74.52	0.3346	2.31140	27.74
39.8007	58.18	0.4015	2.26489	21.66
44.9226	26.92	0.2007	2.01785	10.02

Lampiran 27 : CC/G PdAu 20 menit



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
21.9237	52.33	0.2007	4.05425	63.38
22.8837	82.56	0.4015	3.88630	100.00
25.3238	71.82	0.4015	3.51709	87.00
26.2543	63.44	0.2676	3.39451	76.85
27.1448	47.48	0.4015	3.28514	57.51
36.4889	38.15	0.2676	2.46249	46.21
39.1449	37.13	0.4015	2.30131	44.98
45.2506	16.50	0.2676	2.00398	19.99
47.8351	12.25	0.4015	1.90157	14.83
50.5420	7.10	0.4684	1.80590	8.61
56.9737	7.93	0.5353	1.61637	9.60
66.4403	4.94	0.8029	1.40719	5.98
79.7864	14.89	0.4015	1.20204	18.04

Lampiran 28 : ICCD Au

Nama dan rumus

Kode referensi : 00-004-0784
 Nama mineral : Emas
 Nama senyawa : Emas
 Rumus empiris : Au
 Rumus kimia : Au

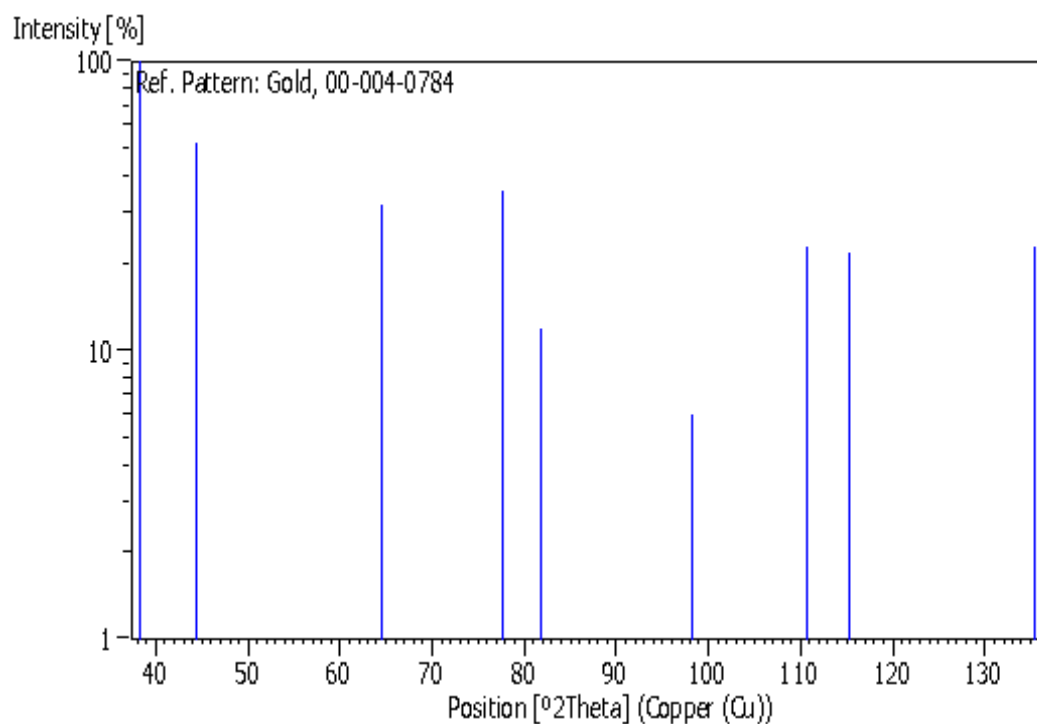
Parameter kristalografi

Sistem kristal : kubik
 Group space : Fm-3m
 Group space number : 225
 a (Å) : 4,0786
 b (Å) : 4,0786
 c (Å) : 4,0786
 Alpha (°) : 90

Beta (°) : 90
 Gamma (°) : 90
 Densitas yang dihitung (g/cm³): 19,3
 Densitas yang diukur (g/cm³) : 19,3
 Volum sel (10⁶ pm³): 67,85
 Z : 4
 RIR : -

Data puncak

No.	h	k	l	d [Å]	2Theta[deg]	I [%]
1	1	1	1	2.35500	38.185	100.0
2	2	0	0	2.03900	44.393	52.0
3	2	2	0	1.44200	64.578	32.0
4	3	1	1	1.23000	77.549	36.0
5	2	2	2	1.17740	81.724	12.0
6	4	0	0	1.01960	98.137	6.0
7	3	3	1	0.93580	110.802	23.0
8	4	2	0	0.91200	115.264	22.0
9	4	2	2	0.83250	135.423	23.0



Lampiran 29 : ICCD Pd

Nama dan rumus

Kode referensi : 00-005-0681
 Nama mineral : Paladium
 Nama senyawa : Paladium
 Rumus empiris : Pd

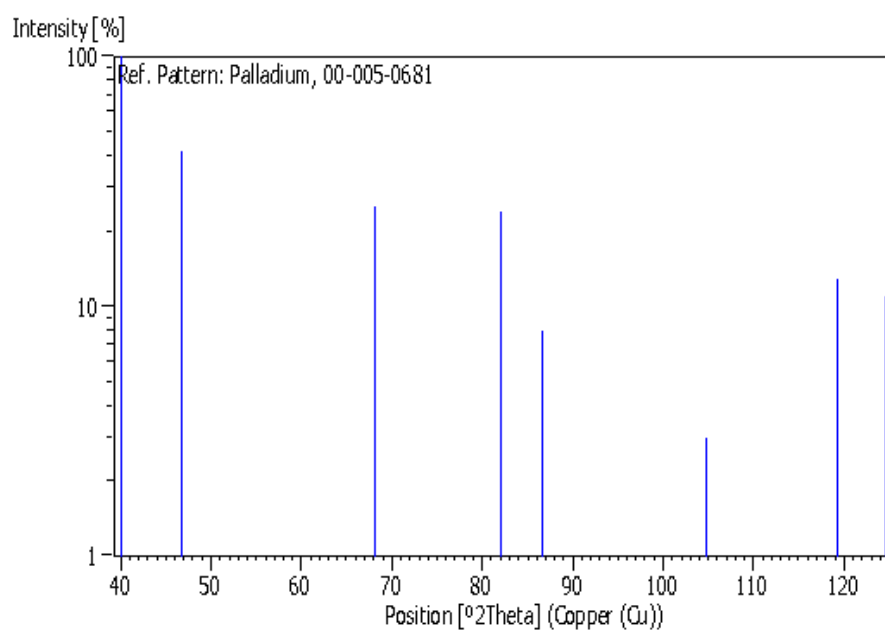
Rumus kimia : Pd

Parameter kristalografi

Sistem Kristal : kubik
Group space : Fm-3m
Space group number : 225
a (Å) : 3,8898
b (Å) : 3,8898
c (Å) : 3,8898
Alpha (°) : 90
Beta (°) : 90
Gamma (°) : 90
Volum sel (10⁶ pm³) : 58,85
Z : 4
RIR : -
Pattern tambahan : PDF 00-046-1043

Data puncak

No.	h	k	l	d [Å]	2Theta[deg]	I [%]
1	1	1	1	2.24600	40.115	100.0
2	2	0	0	1.94500	46.662	42.0
3	2	2	0	1.37600	68.085	25.0
4	3	1	1	1.17300	82.096	24.0
5	2	2	2	1.12320	86.598	8.0
6	4	0	0	0.97230	104.792	3.0
7	3	3	1	0.89240	119.351	13.0
8	4	2	0	0.86970	124.677	11.0



(halaman ini sengaja dikosongkan)

BAB 5

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Dari hasil penelitian ini dapat ditarik kesimpulan bahwa :

- a Elektrokatalis yang terdeposisi *graphene* oksida memiliki nilai hasil pengujian CV yang lebih besar dibandingkan elektrokatalis yang terdeposisi *graphene*.
- b Material Pd memiliki sifat elektrokimia yang paling baik karena nilai ECSA dan I_f/I_b nya paling tinggi dibandingkan elektrokatalis yang disputer oleh Au dan PdAu.
- c Pengaruh *sputter time* pada *sputter* Au, Pd dan PdAu ditunjukkan oleh hasil perhitungan nilai ECSA dan I_f/I_b . Elektrokatalis *sputter* Au memiliki nilai ECSA optimum pada *sputter time* 15 menit yaitu 79,4 cm²/mg dan dengan nilai I_f/I_b 3,67. Sampel elektrokatalis yang telah disputer Pd, juga memiliki nilai ECSA optimum pada variasi *sputter time* 15 menit dengan nilai ECSA 147 cm²/mg dan nilai I_f/I_b tertinggi 11,06 pada variasi *sputter time* 10 menit. Elektrokatalis yang disputer PdAu memiliki nilai ECSA tertinggi pada variasi *sputter time* 20 menit 45,4 cm²/mg dan I_f/I_b 5,6. Sehingga *sputter time* mempengaruhi sifat elektrokimia elektrokatalis dalam mengoksidasi metanol.

5.2 Saran

Saran yang dapat diberikan pada penelitian ini adalah :

- a Penelitian dengan material target paduan PdAu (dispersi tunggal) dapat meningkatkan homogenitas dari elektrokatalis. Sehingga dapat menjadi gambaran untuk yang dilakukan selanjutnya.
- b Selain Pd, material Pt dengan kombinasi dengan material X (X = Fe, Co, dan Ni) dapat mengurangi perilaku elektrokatalis Pt yang mudah teracuni oleh gas karbon monoksida.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

DAFTAR PUSTAKA

- Alhassan, M. dan Garba, M.U. (2006), "Design of an Alkaline Fuel Cell", *Leonardo Electronic Journal of Practices and Technologies*, ISSN 1583-1078, Hal. 99-105
- Anthony, W., Bideaux, R.A., Bladh, K.W. dan Nichols, M.C, (1990), *Graphite Handbook of Mineralogy*, Mineralogical Society of America., Chantilly.
- Bayer, T., Bishop, S.R., Nishihara, M., Sasaki, K. dan Lyth, S.M, (2014), "Characterization of a Graphene Oxide Membrane Fuel Cell", *Journal of Source Energy*, Vol. 272, Hal. 239-247
- Choi, W. dan Lee, J, (2012), *Graphene Synthesis and Application*, CRD Press., New York
- EG & G Technical Service, Inc, (2004), *Fuel Cell Handbook*, 7th edition, US. Department of energy, Inc., Virginia
- Grujicic, M. dan Chittajallu, K.M. (2004), "Design and Optimiazation of Polymer Electrolyte Membrane (PEM) Fuel Cells", *Applied Surface Science*, Vol. 227, hal. 56-72
- Hacquard, A. (2005), *Improving and Understanding Direct Methanol Fuel Cell (DMFC) Performance*, Thesis Master., Worcester Polytechnic Institute, Worcester.
- Hasan. A, (2007), "Aplikasi Sistem Fuel Cell Sebagai Energi Ramah Lingkungan di Sektor Transportasi dan Pembangkit", *Jurnal Teknik Lingkungan*, Vol. 8, No. 3, Hal. 277-286
- Hirschenhofer, J.H., Stauffer, D.B., Engleman, R.R. dan Klett, M.G, (2000), *Fuel Cell Handbook*, 4th edition, Parson Corporation, West Virginia
- Hogarth, M. F. dan Hards, G. A, (1996), *Direct Methanol Fuel Cells Technological Advances and Further Requirements*, platinum metals rev, Johnson Matthey Centre.
- Hsieh, S.H., Hsu, M.C., Liua, W.L. dan Chen, W.J, (2013), "Study of Pt catalyst on graphene and its application to fuel cell". *Applied Surface Science*. Vol. 277, Hal.223– 230.
- Jing-jing, L., Li, S., Wang, A., Mei, Li., Chen, J. dan Feng, J, (2014), "Monodisperse Au-Pd bimetallic alloyed nanoparticles supported on reduced graphene oxide with enhanced electrocatalytic activity towards oxygen reduction reaction", *Electrochimica Acta*. Vol.136, Hal. 521-528

- Kunze dan Julia, (2009), "Electrochemical Versus Heat-Engine Technology", *Angewandte Chemie International*, Ed. 48, Vol. 49, Hal. 9230-9237
- Li, N., Tang, S., dan Meng, X. (2014), "Facile Synthesis of Bimetallic Au@Pd Nanoparticles with Core-Shell Structures on Graphene Nanosheet", *Journal of Materials Science and Technology*, Vol. 30, No. 11, Hal. 1071-1077
- Liu, M., Peng, C., Yang, W., Guo, J., Zheng, Y., Chen, P., Huang, T. dan Xu, J. (2015), "Pd nanoparticles supported on three-dimensional graphene aerogels as highly efficient catalyst for methanol electrooxidation", *Electrochimica Acta*, Vol. 178, Hal. 838-846.
- Mart, P.L. dan Margeridis, J. (1995), *Fuel Cell Air Independent Propulsion of Submarines*, Ship Structures and Materials Division, Aeronautical and Maritime Research Laboratory
- Mattox, D. M., (2010), *Handbook of physical vapour deposition (PVD) processing*, (2010), Elsevier, Inc, ISBN: 9780815520375. USA
- Paschalidou, E., Scaglione, F., Gebert, A., Oswald, S., Rizzi, P. dan Battezzati, L. (2016). "Partially and fully de-alloyed glassy ribbons based on Au: Application in methanol electro-oxidation studies", *Journal of Alloys and Compound*, Vol. 667, Hal. 302-309.
- Ranjan, K.M, Thombre, S.B. dan Shrivastava, N.K, (2015), "A critical review of the current collector for passive direct methanol fuel cells", *Journal of Power Source*, Vol. 25, Hal. 510-529.
- Rayment, C. dan Sherwin, S. (2003), *Introduction to Fuel Cell Technology*, Lecture handout: Aerospace and Mechanical Engineering, University of Notre Dame, Notre Dame
- Ren, F., Zhai, C., Zhu, M., Wang, C., Wang, H., Bin, D., Guo, J., Yang, P dan Du, Y. (2015), "Facile synthesis of PtAu nanoparticles supported on polydopamine reduced and modified graphene oxide as a highly active catalyst for methanol oxidation", *Electrochimica Acta*, Vol. 153. Hal 175-183.
- Shu,H., Chang, H., Su, J., Cao, L., Huang, Q., Zhang, Y dan Xia, T, (2015), "Single-step electrochemical deposition of high performance Au-graphene nanocomposites for nonenzymatic glucose sensing", *Sensor and Actuators B: Chemical*, Vol. 220, Hal. 331-339.
- Sieben, J.M. dan Duarte, M.M.E, (2011), "Nanostructured Pt and Pt-Sn catalysts supported on oxidized carbon nanotubes for ethanol and ethylene glycol electrooxidation". *International Journal of Hydrogen Energy* . Vol. 36. Hal. 3313 -3321

- Tayal, J., Rawat, B. dan Basu, S, (2011), “Bi-metallic and tri-metallic PteSn/C, PteIr/C, PteIreSn/C catalysts for electro-oxidation of ethanol in direct ethanol fuel cell”. *International journal of hydrogen energy*. Vol. 36, Hal 14884-14897
- Tayal, J., Rawat, B. dan Basu, S., (2012). “Effect of addition of rhenium to Pt-based anode catalysts in electro-oxidation of ethanol in direct ethanol PEM fuel cell”. *International Journal of Hydrogen Energy*. Vol. 37, Hal. 4597- 4605
- Wang, C., Li, H., Zhao, J., Zhu, Y., Yuan, W.Z dan Zhang, Y, (2013). “Graphene nanoribbons as a novel support material for high performance fuel cell electrocatalysts”. *International journal of Hydrogen Energy*. Vol. 38. Hal 13230 - 13237
- Wang, P., Zhang, G., Jiao, H., Liu, L. dan Deng, X, (2015), “Pd/graphene nanocomposite as highly active catalyst for the Heck reactions”, *Applied Catalyst*. Vol. 489, Hal 188-192
- Wang, X., Tang, B., Huang, X., Ma, Y. dan Zhang, Z, (2013), “High activity of novel nanoporous Pd-Au catalyst for methanol electro-oxidation in alkaline media”, *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 565, Hal. 120-126
- Wang, Y., Zhao, Y., Yin, J., Liu, M., Dong, Q. dan Su, Y, (2014). “Synthesis and electrocatalytic alcohol oxidation performance of Pd-Co bimetallic nanoparticles supported on graphene”. *International Journal of hydrogen energy*, Vol. 39, Hal. 1325 – 1335.
- Yan, S. dan Zhang, S. (2011), “Investigasi of methanol electrooxidation on Au/C catalyst in alkaline medium”, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, Hal. 13392-13397.
- Yang, G., Zhou, Y., Pan, H., Zhu, C., Fu, S., Wai, C., Du, D., Zhu, J, dan Lin, Y, (2016). “Ultrasonic-assisted synthesis of Pd-Pt/carbon nanotubes nanocomposites for enhanced electro-oxidation of ethanol and methanol in alkaline medium”, *Ultrasonic Sonochemistry*, Vol. 28, Hal 192-198.
- Zhang, F., Jiang, J, dan Ni, Y, (2014), “Synthesis of Pd/C composites from PdCl₂ and β-CD as a catalyst in methanol oxidation”, *Material Science and Engineering B*, Vol. 190, Hal. 90-95.
- Zuo, C., Liu, M.F. dan Liu, M.L. (2012), *Solid Oxide Fuel*, Lecture handout: school of materials science and engineering, Georgia Institute of Technology, Atlanta.

(halaman ini sengaja dikosongkan)

BIOGRAFI



Della Dewi Ratnasari lahir di Karanganyar pada tanggal 5 Februari tahun 1992, dari pasangan suami istri yang bernama Teguh Padmanto & Sarsi. Nama panggilannya Della, lahir sebagai anak ketiga. Lahir dan tinggal di Kadipiro RT 03/ X Bejen Karanganyar Surakarta Jawa Tengah. Penulis menempuh pendidikan formal pertama di TK Pertiwi Bejen, Karanganyar. Di tahun 1998 menempuh pendidikan sekolah dasar di SD Negeri 03 Bejen, Karanganyar. Tahun 2004 melanjutkan pendidikan ke SMP Negeri 1 Karanganyar. Di tahun 2007 melanjutkan pendidikan di SMA Negeri 1 Karanganyar. Penulis mengikuti berbagai kegiatan lomba pada tingkat SMA, sehingga membawa pulang trofi sebagai juara II lomba mata pelajaran komputer tingkat kabupaten Karanganyar, juara IV Olimpiade Informatika tingkat kabupaten Karanganyar. Penulis juga pernah menjadi finalis lomba Mapel Komputer tingkat provinsi Jawa Tengah.

Pada tahun 2010 penulis melanjutkan pendidikan sarjana di Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya jurusan Teknik Material & Metalurgi, Fakultas Teknologi Industri. Selama menempuh pendidikan sarjana, penulis aktif di kegiatan organisasi sebagai staff Badan semi otonom-kewirausahaan Himpunan Mahasiswa Teknik Material tahun 2011-2012, menjadi anggota paduan suara ITS tahun 2010, sebagai anggota aktif Organisasi anti narkoba ITS kerja sama BNN. Kemudian di tahun 2012-2014 penulis menjabat sebagai *Head of course & seminar* di *Society of exploration geophysict student chapter* ITS. Penulis juga pernah mengikuti lomba duta anti narkoba Surabaya di tahun 2013. Selain aktif di organisasi, penulis juga aktif menulis karya tulis ilmiah, sehingga karyanya yang didanai berjudul lipbal (lipstick herbal berbahan dasar madu) sebagai PKM-K dan pagar komposit keramik metal (besi tuang-pasir kuarsa) dengan metode metalurgi serbuk dan sintering (PKM-P). setelah menyelesaikan tugas akhir dengan judul “Pengaruh Variasi Kecepatan *Stiring* & Temperatur *Sintering* Terhadap