

Pabrikasi *Membrane Electrode Assembly* Menggunakan Metode *Decal Transfer* Dengan Variasi Ketebalan Katalis Platina-Titanium Dioksida Didukung Vulcan XC-72

Luh Ary Putri Manik¹, I Made Joni², Made Suarda^{1*}, Ketut Astawa^{1*},
Made Sucipta^{1*}

¹Program Studi Teknik - Mesin Universitas Udayana, Bukit, Jimbaran Bali

²Finder U-CoE- Universitas Padjadjaran, Jatinangor, Jawa Barat

Abstrak

Energi memegang peranan sangat penting dalam kehidupan manusia. Saat ini, sebagian besar sumber energi di Indonesia masih bergantung pada bahan bakar fosil. Penipisan sumber energi fosil dan masalah lingkungan merupakan dua permasalahan utama yang akan dihadapi jika terus bergantung pada energi berbasis bahan bakar fosil. Oleh karena itu, transisi menuju energi hijau, seperti hidrogen, menjadi fokus utama saat ini. Hidrogen dapat dikonversi menjadi listrik menggunakan teknologi proton exchange membrane fuel cell (PEMFC), dimana membrane electrode assembly (MEA) sebagai jantungnya. Kinerja MEA dipengaruhi oleh beberapa faktor, salah satunya oleh metode pabrikasi yang digunakan. Fokus utama penelitian ini adalah peningkatan performa PEMFC melalui pabrikasi MEA menggunakan metode decal transfer dengan variasi ketebalan katalis Pt.TiO₂/vulcan XC-72. Sampel 1 dengan ketebalan anode dan katode 30 μm, Sampel 2 dengan ketebalan anode 30 μm dan katode 40 μm, dan Sampel 3 dengan ketebalan anode 30 μm katode 50 μm. Berdasarkan pengujian kinerja, Sampel 1 menunjukkan hasil terbaik, yaitu menghasilkan tegangan 0,3 μV. Sedangkan sampel 2 dan 3 menghasilkan tegangan yang lebih rendah yaitu 0,2 μV. Ketebalan yang lebih rendah cenderung menghasilkan MEA dengan kinerja yang lebih baik. Hal ini diakibatkan karena umumnya pada ketebalan katalis yang lebih rendah akan menghasilkan hubungan antarmuka yang lebih baik sehingga zona three phase boundaries (TPB) terbentuk.

Kata Kunci: Decal Transfer, ketebalan katalis, Membrane Electrode Assembly

Abstract

Energy is very important in human life. Currently, most energy sources in Indonesia still depend on fossil fuels. The depletion of fossil energy sources and environmental problems are two major problems that will be faced if we continue to rely on fossil fuel-based energy. Therefore, the transition to green energy, such as hydrogen, is a major focus at the moment. Hydrogen can be converted into electricity using proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) technology, where the membrane electrode assembly (MEA) is the key. MEA performance is influenced by several factors, one of which is the fabrication method used. The main focus of this study is to improve PEMFC performance through MEA fabrication using the decal transfer method with variations in the thickness of the Pt.TiO₂/vulcan XC-72 catalyst. Sample 1 with anode and cathode thickness of 30 μm, Sample 2 with anode thickness of 30 μm and cathode of 40 μm, and Sample 3 with anode thickness of 30 μm and cathode of 50 μm. Based on performance testing, Sample 1 showed the best results, which produced a voltage of 0.3 μV. While samples 2 and 3 produced a lower voltage of 0.2 μV. Lower thickness tends to produce MEA with better performance. This is because generally at a lower catalyst thickness it will produce a better interface relationship so that the three phase boundaries (TPB) zone is formed.

Keywords: Decal Transfer, catalyst thicknes, Membrane Electrode Assembly

1. Pendahuluan

Bahan bakar fosil seperti minyak bumi dan batu bara merupakan sumber energi utama yang umumnya digunakan di Indonesia saat ini. Penggunaan bahan bakar fosil yang berlebihan mengakibatkan berbagai masalah lingkungan, salah satunya adalah perubahan iklim global [1]. Hal ini terjadi akibat emisi yang dihasilkan dari penggunaan bahan bakar fosil. Selain itu, ketersediaan bahan bakar fosil yang terbatas dikhawatirkan menyebabkan krisis energi, sehingga mengakibatkan sulitnya pemenuhan kebutuhan energi. Maka dari itu, upaya transisi

menuju energi yang lebih ramah lingkungan dan terbarukan terus dilakukan [2].

Hidrogen merupakan sumber energi yang dianggap mampu menggantikan bahan bakar fosil sebagai sumber energi utama [3]. Melalui reksi elektrokimia, hidrogen dapat dikonversi menjadi listrik menggunakan teknologi *fuel cell* [4]. Teknologi *fuel cell* telah di terapkan dalam berbagai sektor, seperti pada sektor transportasi yang umumnya menggunakan *proton exchange membrane fuel cell* (PEMFC) [5]. PEMFC merupakan *fuel cell* suhu rendah dengan empat komponen penyusun,

yaitu *end plat*, *current collector*, gasket, dan *membrane electrode assembly* (MEA) [6].

MEA adalah komponen utama dalam PEMFC, terdiri atas tiga komponen penyusun, yaitu *proton exchange membrane* (PEM), lapisan katalis, dan *gas diffusion layer* (GDL) yang membentuk zona *three phase boundaries* (TBP) [7-9]. Di dalam MEA inilah reaksi elektrokimia terjadi, dimana lapisan katalis memegang peranan yang sangat penting [7]. Umumnya katalis menggunakan material platina (Pt) yang didukung karbon [3]. Penggunaan Pt mengakibatkan tingginya biaya produksi [10]. Hal ini mendorong dilakukannya berbagai penelitian untuk menekan biaya produksi sekaligus meningkatkan kinerja *fuel cell*, salah satunya dengan cara substitusi titanium dioksida (TiO₂) [11]. Selain itu, pemilihan metode pabrikan diketahui mampu mengurangi penggunaan Pt sekaligus meningkatkan kinerja *fuel cell* [12]. *Decal transfer* merupakan bagian dari metode *catalyst coated membrane* (CCM) yang saat ini banyak diterapkan untuk mengasihkan MEA dengan kinerja yang baik. Metode *decal transfer* dianggap mampu mengasihkan MEA dengan area aktif elektrokimia yang lebih tinggi dibandingkan metode lainnya [7]. Metode pabrikan *decal transfer* ini menggabungkan dua teknik dalam prosesnya, yaitu *doctor blade* dan *hot press* [13].

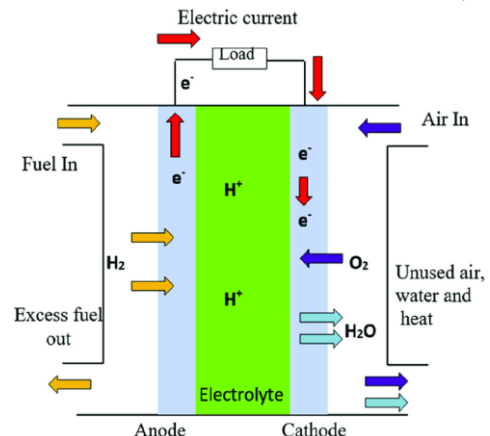
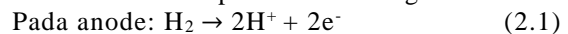
Doctor blade merupakan teknik pelapisan katalis pada substrat menggunakan *doctor knife*. Teknik pelapisan ini dapat mengasihkan lapisan katalis yang merata, homogen, dan akurat karena dalam prosesnya ketebalan katalis dapat diatur sesuai dengan kebutuhan [7]. Pengaturan ketebalan lapisan katalis ini sangat penting, karena ketebalan lapisan katalis dapat mempengaruhi porositas, resistansi massa, resistansi aktivitas elektroda, dan ohmik yang nantinya akan berdampak pada kinerja *fuel cell* secara keseluruhan [14].

Studi lebih lanjut mengenai pabrikan MEA dengan katalis Pt.TiO₂/vulcan XC-72 menggunakan metode *decal transfer* dengan variasi ketebalan lapisan katalis tertentu dilakukan untuk menganalisis kinerjanya terhadap MEA yang dihasilkan. Untuk menjaga fokus penelitian dan meminimalisir penyimpangan akibat luasnya permasalahan, maka perlu dilakukan pembatasan, diantaranya kemurnian material komponen MEA yang digunakan sesuai dengan yang dikeluarkan oleh pabrikan. Tekanan, waktu, dan suhu lingkungan diasumsikan konstan selama proses *hot press*, dan katalis yang digunakan dalam pembuatan MEA adalah Pt.TiO₂/vulcan XC-72 yang telah dikembangkan pada penelitian sebelumnya.

2. Dasar Teori

2.1. Proton Exchange Membrane Fuel Cell

Proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) merupakan *fuel cell* suhu rendah yang beroperasi pada kisaran suhu 80°C [15]. PEMFC terdiri atas beberapa komponen penyusun, yaitu *end plat*, *current collector*, gasket, dan MEA [6]. Secara konsep, pengoperasian sistem PEMFC seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1. Jenis *fuel cell* ini menggunakan hidrogen sebagai bahan bakar dan oksigen (dapat menggunakan udara) sebagai oksidan. Hidrogen akan disuplai ke anode, sedangkan oksigen ke katode. Hidrogen akan mengalami reaksi oksidasi atau *hydrogen oxidation reaction* (HOR), sedangkan oksigen mengalami reaksi reduksi atau *oxygen reduction reaction* (ORR). Reaksi HOR akan memecah hidrogen menjadi ion hidrogen positif (H⁺) dan elektron (e⁻). H⁺ akan ditransfer menuju katode melalui PEM, sedangkan elektron akan diangkut oleh GDL menuju *current collector* untuk dialirkan ke *circuit external*. H⁺ yang telah sampai di katode akan bertemu dengan e⁻ dari *circuit external* dan oksigen membentuk air. Reaksi di atas dapat dituliskan dalam persamaan sebagai berikut:



Gambar 1. Sistem Pengoperasian PEMFC [16]

2.2. Membrane Elektrode Assembly

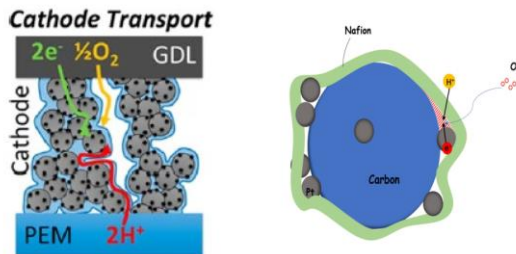
Membrane electrode assembly (MEA) merupakan komponen paling penting dalam PEMFC karena pada MEA inilah terdapat zona TBP. TBP merupakan zona dimana elektrolit, elektroda dan area berpori berpotongan seperti pada Gambar 2. Pada zona TBP inilah transport bahan bakar, ionik, dan muatan terjadi [9].

MEA terdiri atas tiga komponen penyusun yaitu:

a. Proton Exchange Membrane

Proton exchange membrane (PEM) berperan sebagai elektrolit, umumnya berbahan dasar *perfluorosulfonic acid* (PFSA) seperti nafion. PEM berfungsi untuk mentransfer H⁺

dari sisi anoda ke katoda. PEM harus memiliki permeabilitas gas yang rendah karena harus mampu mencegah konduksi elektron dan mencegah bahan bakar bercampur dengan oksidan. Selain itu, PEM juga harus memiliki kelembapan yang rendah, stabilitas elektrokimia, stabilitas termal, dan stabilitas mekanik yang baik [9].



Gambar 2. Zona Three Phase Boundaries [9]

b. Lapisan Katalis

Lapisan katalis berperan sebagai elektroda, yaitu tempat berlangsungnya reaksi elektrokimia. Di dalam lapisan katalis inilah hidrogen dan oksigen mengalami reaksi oksidasi dan reduksi. Terdapat empat karakteristik utama yang harus dimiliki lapisan katalis, yaitu sifat berpori untuk media konduksi, konduktivitas untuk transfer elektron, kontak antara muka dengan membran untuk transfer massa, dan juga lapisan katalis harus cukup tipis. Ketebalan tidak hanya mempengaruhi kecepatan perpindahan massa dan muatan tetapi juga berkaitan dengan efisiensi pemanfaatan katalis [9].

c. Gas Diffusion Layer

Gas diffusion layer (GDL) terdiri dari dua lapisan, yaitu gas diffusion media (GDM) dan microporous layer (MPL). GDL merupakan struktur berpori yang berperan sebagai pengangkut elektron menuju lapisan katalis atau sebaliknya, menyediakan jalur difusi gas ke lapisan katalis, serta mendukung pengelolaan air [12]. Umumnya GDL menggunakan bahan berbasis karbon, yaitu serat karbon sebagai GDM dan serbuk karbon sebagai MPL [9].

2.3. Decal Transfer

Decal transfer merupakan bagian dari metode catalyst coated membrane (CCM) dengan mengaplikasikan katalis langsung pada membran melalui substrat, umumnya teflon atau kapton film dengan menggunakan teknik doctor blade coating. Substrat yang telah dilapisi katalis ditransfer ke kedua sisi membran elektrolit menggunakan mesin hot press [17]. Mekanisme proses decal transfer ditunjukkan pada Gambar 3.

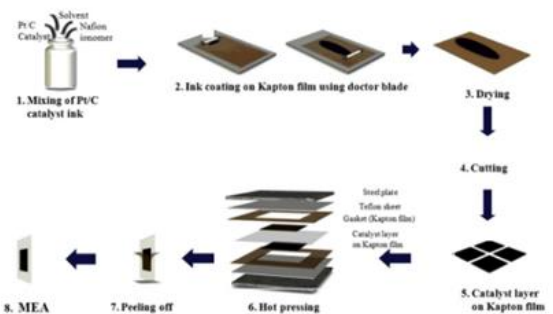
A. Doctor Blade

Doctor blade coating merupakan teknik pelapisan katalis menggunakan alat yang disebut dengan doctor knife. Teknik pelapisan

ini memiliki keunggulan dibandingkan teknik pelapisan lainnya, yaitu pendistribusian katalis yang homogen dan akurasi ketebalan. Menggunakan teknik doctor blade, ketebalan tinta katalis dapat disesuaikan dengan kebutuhan [7].

B. Hot Press

Hot press merupakan metode yang umum digunakan untuk mentransfer katalis ke membran. Teknik ini mampu menghasilkan kontak antarmuka yang baik antara katalis dan membran. Umumnya, pada proses hot press kondisi seperti tekanan, suhu dan waktu memegang peranan yang sangat penting terhadap kinerja MEA secara keseluruhan [18]. Namun, saat ini metode hot press rolling juga dipertimbangkan dalam pabrikasi MEA karena mampu menghasilkan MEA dengan kinerja yang baik [19].



Gambar 3. Mekanisme Proses CCM-DT [17]

3. Metode penelitian

Pada penelitian ini dilakukan pabrikasi MEA menggunakan metode decal transfer dengan katalis Pt.TiO₂/vulcan XC-72.

3.1 Pre-treatment Membrane

Membrane direndam secara bergantian menggunakan larutan H₂SO₄ (3-5%) dan H₂O₂ (0,5M) yang dipanaskan pada suhu 60-80°C. Kemudian dibilas menggunakan air deionisasi hingga pH 7. Lalu, disimpan pada air destilasi.

3.2 Pembuatan Tinta Katalis

Tinta katalis dibuat dengan mencampurkan 1gr katalis Pt.TiO₂/vulcan XC-72; 2,4gr air destilasi; 1,2gr isopropanol alkohol (IPA); 1,2gr nafion solution; dan 0,75gr etilen glycol. Campuran ini kemudian di homogenasi menggunakan ultrasonikasi pada frekuensi 60 Hz selama 3jam. Dilakukan penambahan es untuk mencegah kenaikan suhu selama proses ultrasonikasi.

3.3 Deposisi Tinta Katalis

Deposisi tinta katalis pada kapton film dilakukan menggunakan mesin doctor blade dengan ketebalan yang telah ditentukan. Pada penelitian ini terdapat tiga variasi ketebalan lapisan katalis, yaitu Sampel 1 dengan ketebalan anode dan katode 30µm, Sampel 2 dengan ketebalan anode 30µm dan katode 40µm, dan Sampel 3 dengan ketebalan anode 30µm dan

katode $50\mu\text{m}$. Kapton film yang telah terlapiis katalis kemudian dikeringkan pada *vacuum oven* dengan suhu 90°C selama 70 menit.

3.4 Hot Press

Membran diapit katalis yang telah dideposisikan pada kapton film kemudian dimasukkan pada mesin *hot press*. *Hot press* dilakukan pada suhu 80°C dan ketebalan $140\mu\text{m}$. Setelah proses *hot press*, katalis akan tertransfer ke membran, lalu kapton film dilepas.

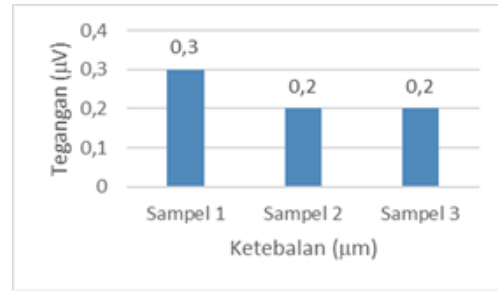
3.5 PEMFC Testing

PEMFC *testing* merupakan pengujian untuk mengetahui kinerja MEA. Pengujian ini dilakukan dengan prototipe PEMFC menggunakan MEA yang telah berhasil dipabrikasi. Rancangan alat pengujian MEA pada PEMFC terdiri atas komponen elektrolizer dan unit PEMFC yang dapat dibongkar pasang. Cara kerja alat ini adalah elektrolizer dihubungkan pada *power supply* dengan tegangan yang diatur 10V. Hidrogen hasil elektrolisis akan dialirkan ke sisi anode PEMFC sedangkan pasokan oksigen ke sisi katode menggunakan ketersediaan udara atmosfer pada lingkungan pengujian. Selanjutnya, akan terjadi rekasi elektrokimia di MEA. Lalu *current collector* pada PEMFC dihubungkan dengan pengukur tegangan listrik.

4. Hasil dan Pembahasan

Hasil pengujian kinerja ketiga sampel ditunjukkan pada Gambar 4. Dapat dilihat Sampel 1 dengan variasi ketebalan katalis sisi anode $30\mu\text{m}$ dan katode $30\mu\text{m}$ menghasilkan tegangan terbesar yaitu $0,3\mu\text{V}$. Sedangkan Sampel 2 dan 3 menghasilkan tegangan lebih kecil yaitu $0,2\mu\text{V}$. Hal ini dapat disebabkan karena pada Sampel 1 dengan ketebalan lapisan katalis yang lebih rendah, membran dan katalis membentuk antarmuka yang baik, sehingga zona TPB terbentuk dan transfer massa berlangsung dengan optimal [9].

Ketebalan katalis akan mempengaruhi porositas. Semakin tebal lapisan katalis, porositasnya cenderung meningkat [20]. Hal ini dikaitkan dengan fenomena *pore collapse* atau runtuhnya lapisan katalis selama proses pengeringan dalam pabrikasi MEA, dimana ketebalan lapisan katalis erat kaitannya dengan struktur pori yang terbentuk selama proses pabrikasi [21]. Ketebalan yang lebih tinggi dapat meningkatkan porositas yang dapat menghambat transport ionik dan reaktan untuk menghasilkan listrik secara optimal. Oleh karena itu, pengendalian ketebalan selama pabrikasi sangat penting untuk mencapai kinerja *fuel cell* yang optimal. [21-22].



Gambar 4. Grafik Hubungan Ketebalan Lapisan Katalis dan Tegangan

5. Kesimpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa ketebalan lapisan katalis memengaruhi kinerja MEA PEMFC. Ketebalan lapisan katalis dan kinerja MEA berbanding terbalik, yaitu semakin tipis lapisan katalis semakin baik kinerja yang dihasilkan. Hal ini dapat disebabkan karena karakteristik kontak antarmuka katalis dan membran yang membentuk zona TPB.

Daftar Pustaka

- [1] Azhar, M., Solechan, S., Saraswati, R., Suharso, P., Suhartoyo, S., & Ispriyarso, B., 2018, *The New Renewable Energy Consumption Policy of Rare Earth Metals to Build Indonesia's National Energy Security*, In E3S Web of Conferences (Vol. 68, p. 03008). EDP Sciences.
- [2] A. Nugraha *et al.*, 2022, *Energy Outlook 2022*, Jakarta: Pertamina Energy Institute.
- [3] Zhao, Y., Mao, Y., Zhang, W., Tang, Y., & Wang, P., 2020, *Reviews on the effects of contaminations and research methodologies for PEMFC*, International journal of hydrogen energy, 45(43), 23174-23200.
- [4] Bhosale, A. C., Ghosh, P. C., & Assaud, L., 2020, *Preparation methods of membrane electrode assemblies for proton exchange membrane fuel cells and unitized regenerative fuel cells: A review*, Renewable and Sustainable Energy Reviews, 133, 110286.
- [5] Gopal, S. M., & Reddy, K. M., 2023, *Design and control of high voltage gain interleaved boost converter for fuel cell based electric vehicle applications*, J Electron Comput Netw Appl Math, 3(32), 9-24.
- [6] Parekh, A., 2022, *Recent developments of proton exchange membranes for PEMFC: A review*, Frontiers in Energy Research, 10, 956132.

- [7] Lim, B. H., Majlan, E. H., Tajuddin, A., Husaini, T., Daud, W. R. W., Radzuan, N. A. M., & Haque, M. A., 2021, *Comparison of catalyst-coated membranes and catalyst-coated substrate for PEMFC membrane electrode assembly: A review*, Chinese Journal of Chemical Engineering, 33, 1-16.
- [8] Majlan, E. H., Rohendi, D., Daud, W. R. W., Husaini, T., & Haque, M. A., 2018, *Electrode for proton exchange membrane fuel cells: A review*, Renewable and Sustainable Energy Reviews, 89, 117-134.
- [9] Xie, M., Chu, T., Wang, T., Wan, K., Yang, D., Li, B., & Zhang, C., 2021, *Preparation, performance and challenges of catalyst layer for proton exchange membrane fuel cell*, Membranes, 11(11), 879.
- [10] Majlan, E. H., Rohendi, D., Daud, W. R. W., Husaini, T., & Haque, M. A., 2018, *Electrode for proton exchange membrane fuel cells: A review*, Renewable and Sustainable Energy Reviews, 89, 117-134.
- [11] Wang, J., Xu, M., Zhao, J., Fang, H., Huang, Q., Xiao, W., ...& Wang, D., 2018, *Anchoring ultrafine Pt electrocatalysts on TiO₂-C via photochemical strategy to enhance the stability and efficiency for oxygen reduction reaction*, Applied Catalysis B: Environmental, 237, 228-236.
- [12] Okonkwo, P. C., Ige, O. O., Uzoma, P. C., Emori, W., Benamor, A., & Abdullah, A. M., 2021, *Platinum degradation mechanisms in proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) system: A review*, International journal of hydrogen energy, 46(29), 15850-15865.
- [13] Choi, M., Kim, J. K., Kim, J., Yang, S., Park, J. E., Kim, O. H., & Cho, Y. H., 2018, *PtRu/C catalyst slurry preparation for large-scale decal transfer with high performance of proton exchange membrane fuel cells*. RSC advances, 8(63), 36313-36322.
- [14] Ferng, Y. M., Su, A., & Hou, J., 2014, *Parametric investigation to enhance the performance of a PBI-based high-temperature PEMFC*, Energy conversion and management, 78, 431-437.
- [15] Akinyele, D., Olabode, E., & Amole, A., 2020, *Review of fuel cell technologies and applications for sustainable microgrid systems*, Inventions, 5(3), 42.
- [16] Li, C., Liu, Y., Xu, B., & Ma, Z., 2019, *Finite time thermodynamic optimization of an irreversible proton exchange membrane fuel cell for vehicle use*, Processes, 7(7), 419.
- [17] Cho, H. J., Jang, H., Lim, S., Cho, E., Lim, T. H., Oh, I. H., ... & Jang, J. H., 2011, *Development of a novel decal transfer process for fabrication of high-performance and reliable membrane electrode assemblies for PEMFCs*, International journal of hydrogen energy, 36(19), 12465-12473.
- [18] Gatto, I., Saccà, A., Baglio, V., Aricò, A. S., Oldani, C., Merlo, L., & Carbone, A., 2019, *Evaluation of hot pressing parameters on the electrochemical performance of MEAs based on Aquivion® PFSA membranes*, Journal of Energy Chemistry, 35, 168-173.
- [19] Mehmood, A., & Ha, H. Y., 2012, *An efficient decal transfer method using a roll-press to fabricate membrane electrode assemblies for direct methanol fuel cells*, International journal of hydrogen energy, 37(23), 18463-18470.
- [20] Sassin, M. B., Garsany, Y., Atkinson Iii, R. W., Hjelm, R. M. E., & Swider-Lyons, K. E., 2019, *Understanding the interplay between cathode catalyst layer porosity and thickness on transport limitations en route to high-performance PEMFCs*, International Journal of Hydrogen Energy, 44(31), 16944-16955.
- [21] Suzuki, T., Tanaka, H., Hayase, M., Tsushima, S., & Hirai, S., 2016, *Investigation of porous structure formation of catalyst layers for proton exchange membrane fuel cells and their effect on cell performance*. International Journal of Hydrogen Energy, 41(44), 20326-20335.
- [22] Xia, L., Ni, M., Xu, Q., Xu, H., & Zheng, K., 2021, *Optimization of catalyst layer thickness for achieving high performance and low cost of high temperature proton exchange membrane fuel cell*. Applied Energy, 294, 117012.

	<p>Luh Ary Putri Manik melanjutkan studi di Program Sarjana Teknik Mesin Universitas Udayana pada tahun 2020. Bidang penelitian yang diminati adalah <i>sustainable energy</i>, khususnya hidrogen yang kemudian ditekuni sebagai topik penelitian tugas akhir.</p>
---	--