

## PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI SEPARATOR BATERAI BERBAHAN SELULOSA ALGA *CLADOPHORA*

### PREPARATION AND CHARACTERIZATION OF BATTERY SEPARATOR BASED ON *CLADOPHORA* ALGAE CELLULOSE

Anna Niska Fauza<sup>1</sup>, Mardiyati<sup>1\*</sup>, Steven<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Kelompok Keahlian Ilmu dan Teknik Material, Fakultas Teknik Mesin dan Dirgantara,  
Institut Teknologi Bandung  
Jl. Ganesha 10 Bandung 40132, Indonesia

Diterima: 19 November 2019

Direvisi: 3 Desember 2019

Disetujui: 26 Desember 2019

#### ABSTRAK

Membran separator merupakan salah satu komponen penting yang berfungsi sebagai pemisah antara dua elektroda untuk transfer ion didalam elektrolit, serta memastikan keselamatan dan performa kapasitansi pada baterai. Pengembangan material separator baterai yang ramah lingkungan saat ini banyak dilakukan dengan tujuan untuk mencari material alternatif selain poliolefin. Salah satu material yang cukup menjanjikan adalah selulosa. Selulosa memiliki sifat *wettability* yang baik, biaya pemrosesan yang rendah, sifat mekanik yang baik dan merupakan material yang dapat diperbaharui. Pada penelitian ini dilakukan pembuatan separator baterai dari bahan selulosa yang diekstrak dari alga *Cladophora*. Selulosa diperoleh melalui tiga perlakuan yaitu alkalisasi dengan menggunakan NaOH 17,5%, perlakuan asam dengan menggunakan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1M dan *bleaching* dengan menggunakan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 5%. Membran separator dibuat dengan menggunakan metode *solution casting* dengan konsentrasi selulosa sebesar 0,011; 0,008; 0,006; 0,004 dan 0,003 gr/cm<sup>2</sup>. Pengukuran porositas dan stabilitas termal dilakukan dengan menggunakan *scanning electron microscopy* (SEM) dan *thermogravimetric analysis* (TGA). Pengujian stabilitas kimia dan sudut kontak dilakukan untuk menentukan ketahanan kimia membran separator terhadap elektrolit dan sifat *wettability*. Dari penelitian ini dapat disimpulkan bahwa selulosa yang diekstrak dari alga *Cladophora* memiliki potensi yang besar untuk dimanfaatkan sebagai bahan baku pembuatan membran separator baterai.

**Kata Kunci:** alga, *Cladophora*, membran separator, porositas, selulosa.

#### ABSTRACT

*Separator membrane is one of the important components that serves as a separator between two electrodes for ionic transfer in the electrolyte, as well as to ensure the safety and capacitance performance of the battery. Recently, research on environmentally friendly materials for separator has been developed in order to substitute polyolefin-based separator, one of them is cellulose. Cellulose has excellent properties, such as good wettability, low cost of processing, good mechanical properties, and renewable. In this research, the separator was prepared by using cellulose extracted from Cladophora algae. Cellulose was extracted by performed alkalization, acid treatment and bleaching with 17.5% of NaOH, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1M and 5% of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> respectively. The separator membrane was prepared by using solution casting with concentration of cellulose varied in 0,011; 0,008; 0,006; 0,004 dan 0,003 gr/cm<sup>2</sup>. The porosity and thermal stability were determined by using scanning electron microscopy (SEM) and thermogravimetric analysis (TGA). Chemical stability and contact angle characterization were conducted to determine chemical retention of the separator membrane toward electrolyte and wettability of the membrane. Based on the result, the extracted cellulose from Cladophora algae has the potential to be utilized as a material for the separator membrane of battery.*

**Keywords:** algae, *Cladophora*, separator membrane, porosity, cellulose.

#### PENDAHULUAN

*Lithium-ion batteries* (LIB) merupakan salah satu teknologi penyimpanan energi yang

memiliki densitas energi yang tinggi, *cycle lifetime* yang lama serta tingkat keamanan yang baik [1]. Secara umum, LIB terdiri atas tiga komponen, yaitu katoda, anoda dan separator

\*Corresponding author:

Email: mardiyati@material.itb.ac.id

DOI: <http://dx.doi.org/10.37209/jtbbt.v9i2.135>

yang direndam pada larutan elektrolit. Seiring dengan meningkatnya kebutuhan akan baterai yang memiliki performa optimum pada semua kondisi, saat ini banyak dilakukan penelitian terkait komponen-komponen baterai tersebut dan salah satunya adalah separator [2]. Material separator berfungsi untuk memisahkan anoda dan katoda agar tidak terjadi *internal short circuit* dan memberikan suatu jalur konduksi ion di dalam elektrolit cair [3]. Material yang umum digunakan pada separator komersial adalah bahan poliolefin karena memiliki kelebihan berupa stabilitas kimia, dan sifat mekanik yang cukup baik. Namun, dalam penggunaannya separator poliolefin memiliki sifat *wettability* yang terbatas dan ketidakstabilan dimensi pada temperatur operasi yang tinggi [4,5]. Oleh karena itu, saat ini pengembangan material alternatif untuk menggantikan poliolefin sebagai separator sangat gencar dilakukan.

Salah satu material alternatif yang banyak dikembangkan untuk dimanfaatkan sebagai material separator adalah selulosa. Pembuatan separator berbahan dasar selulosa dari berbagai macam sumber telah banyak dilakukan. Jiang dkk (2015) melaporkan bahwa membran separator yang dihasilkan memiliki stabilitas dimensi yang baik hingga temperatur 180°C, konduktivitas ionik yang baik serta memiliki performa baterai yang dapat bersaing dengan baterai yang menggunakan separator komersial [1]. Seng dkk (2019) melakukan pembuatan membran separator selulosa berbahan dasar *softwood*, *hardwood*, bambu, kapas dan rami. Membran separator yang dihasilkan menunjukkan nilai sudut kontak terhadap air sebesar 18°, memiliki stabilitas dimensi yang baik pada temperatur 160°C selama 120 menit, dan kekuatan tarik yang sangat tinggi mencapai 137,6 MPa [6]. Berdasarkan hasil-hasil penelitian yang telah dilaporkan sebelumnya, separator berbasis selulosa menunjukkan sifat lebih unggul dibandingkan membran separator berbasis poliolefin dan berpotensi untuk dimanfaatkan sebagai material alternatif untuk membuat material separator pada LIB.

Secara umum, selulosa merupakan salah satu sumber daya yang sangat melimpah di alam dan berperan penting sebagai penyusun utama dinding sel tumbuhan [6,7]. Selulosa tersusun atas molekul glukosa yang terikat melalui ikatan  $\beta$ -1,4-glikosidik serta memiliki jumlah ikatan hidrogen yang sangat banyak pada intra dan intermolekulnya sehingga selulosa memiliki sifat sifat mekanik, stabilitas kimia, dan ketahanan

termal yang baik [6]. Secara umum, selulosa dapat diperoleh dari berbagai sumber biomassa, salah satunya adalah alga *Cladophora*. Alga *Cladophora* merupakan salah satu jenis varietas alga yang berbentuk filamen panjang yang dapat ditemukan dalam jumlah yang sangat besar di perairan darat dan laut Indonesia [8]. Alga *Cladophora* memiliki kandungan selulosa yang mencapai 30-50% dengan tingkat kristalinitas mencapai 95% [9,10]. Selulosa berbahan dasar alga *Cladophora* dilaporkan dapat digunakan sebagai material dalam pembuatan membran separator untuk baterai [11].

Secara umum, pembuatan membran separator berbahan dasar selulosa dapat dilakukan dengan menggunakan metode *solution casting* [2]. Terdapat beberapa parameter penting yang mempengaruhi kualitas membran separator selulosa yang dibuat melalui proses *solution casting*, seperti konsentrasi selulosa terhadap luas area, rasio perbandingan selulosa terhadap media pendispersi dan proses pengeringan. Hingga saat ini, belum terdapat publikasi yang melaporkan pengaruh parameter tersebut terhadap membran separator berbahan dasar selulosa. Disisi lain, untuk menghasilkan baterai yang ringan dengan densitas energi tinggi, ketebalan separator harus dijaga setipis mungkin dan memiliki ukuran pori dibawah 1  $\mu\text{m}$  [6]. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan pembuatan membran separator baterai berbasis selulosa yang diekstrak dari alga *Cladophora*. Membran separator selulosa tersebut dibuat dengan menggunakan metode *solution casting* dengan memvariasikan konsentrasi selulosa terhadap luas area. Pengaruh konsentrasi selulosa terhadap luas area terhadap morfologi, stabilitas termal, *wettability* dan stabilitas kimia terhadap elektrolit dari membran separator selulosa akan dibahas pada penelitian ini.

## BAHAN DAN METODE

### Bahan

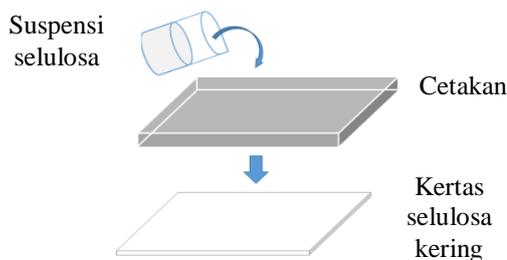
Alga *Cladophora* sp. diperoleh dari pantai Krakal, Yogyakarta, Indonesia. Natrium hidroksida (NaOH) dan hidrogen peroksida ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) diperoleh dari PT. Bratachem, Bandung, Indonesia. Asam sulfat ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) diperoleh dari CV. Sopyan Jaya Cemerlang, Bandung, Indonesia. *Lithium hexafluorophosphate* ( $\text{LiPF}_6$ ) disediakan oleh Laboratorium Riset Baterai B4T, Bandung, Indonesia.

### Ekstraksi Selulosa dari Alga *Cladophora* sp.

Alga *Cladophora* kering dibersihkan dengan menggunakan air hingga seluruh pengotornya terbawa oleh air. Kemudian, alga *Cladophora* yang telah dibersihkan, dialkalisasi dengan sistem *reflux* menggunakan larutan NaOH 17,5% dengan perbandingan 1:50 (w/w) pada temperatur 98°C selama 2 jam. Alga yang telah dialkalisasi, dicuci dengan menggunakan air DM hingga diperoleh pH netral dan dikeringkan. Selanjutnya alga yang telah diproses sebelumnya, diberikan perlakuan asam dengan menggunakan larutan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1 M dengan perbandingan 1:100 (w/v) pada temperatur 105°C selama 3 jam. Alga yang telah diberi perlakuan asam, dicuci dengan menggunakan air DM hingga diperoleh pH netral dan dikeringkan didalam oven hingga beratnya konstan. Alga hasil perlakuan asam kemudian diberikan perlakuan *bleaching* dengan menggunakan larutan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 5% dengan perbandingan 1:100 (w/w) pada temperatur 100°C selama 3 jam. Alga yang telah diberikan perlakuan *bleaching*, dicuci dengan menggunakan air DM hingga diperoleh pH netral dan dikeringkan didalam oven hingga beratnya konstan.

### Pembuatan Membran Separator

Selulosa alga *Cladophora* didispersikan di dalam larutan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1% dengan perbandingan 1:100 (w/v) hingga terdispersi secara merata. Selulosa yang telah terdispersi didalam larutan asam, disaring dengan menggunakan kertas saring dan dicuci dengan air DM hingga diperoleh pH netral. Selulosa alga *Cladophora* yang telah netral, didispersikan kembali di dalam air dengan perbandingan 1:100 (w/w). Kemudian, larutan selulosa alga *Cladophora* dituangkan kedalam cetakan plastik dengan berat 1; 0,75; 0,5; 0,35; dan 0,25 gram pada cetakan plastik yang memiliki luas cetakan 90 cm<sup>2</sup> hingga diperoleh konsentrasi selulosa terhadap luas area sebesar 0,011; 0,008; 0,006; 0,004; 0,003 g/cm<sup>2</sup>. Selulosa yang telah dicetak selanjutnya dikeringkan hingga diperoleh berat konstan. Ilustrasi pembuatan membran separator berbahan dasar selulosa alga *Cladophora* dapat dilihat pada Gambar 1.



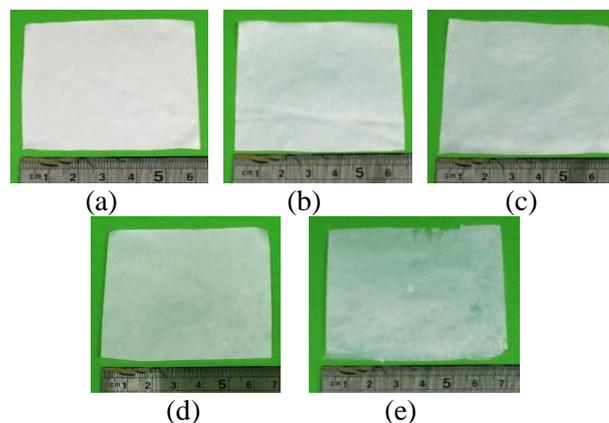
**Gambar 1.** Metode Pencetakan Membran Separator Selulosa.

### Karakterisasi dan Pengujian

Pengukuran ketebalan membran selulosa dilakukan dengan menggunakan jangka sorong digital (Krisbow). Pengamatan morfologi membran separator selulosa dilakukan dengan menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM SU3500). Pengujian *wettability* pada membran separator dilakukan dengan mengukur sudut kontak permukaan antara membran selulosa dan elektrolit LiPF<sub>6</sub>. Stabilitas termal diuji dengan menggunakan karakterisasi *Thermogravimetric Analysis* (TGA) pada rentang temperatur pengujian 30 hingga 600°C. Stabilitas ketahanan kimia terhadap elektrolit diuji dengan melakukan perendaman membran separator di dalam larutan elektrolit LiPF<sub>6</sub> selama 72 jam. Pengukuran ketebalan, sudut kontak, stabilitas kimia dilakukan di Laboratorium Metalurgi dan Material, ITB. Pengujian SEM dan TGA dilakukan di Pusat Penelitian Nanosains dan Nanoteknologi, ITB.

### HASIL DAN PEMBAHASAN

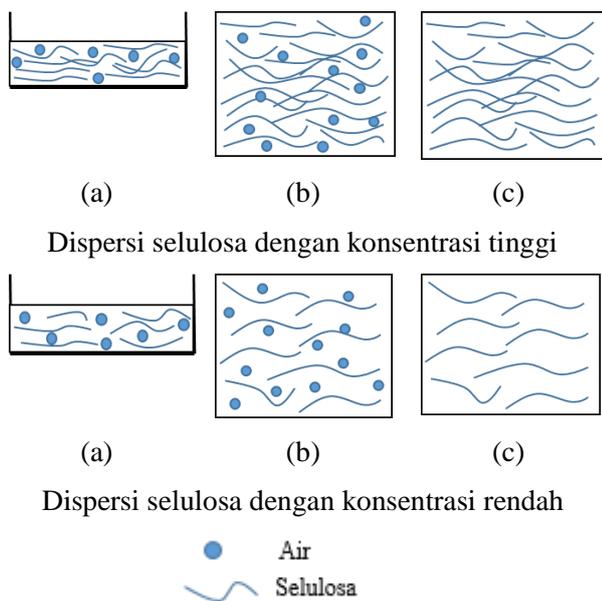
Gambar membran separator selulosa yang dibuat pada berbagai variasi konsentrasi selulosa terhadap luas area dapat dilihat pada Gambar 2.



**Gambar 2.** Membran Selulosa dengan Variasi Konsentrasi Selulosa (a) 0,011 (b) 0,008 (c) 0,006 (d) 0,004 dan (e) 0,003 g/cm<sup>2</sup>.

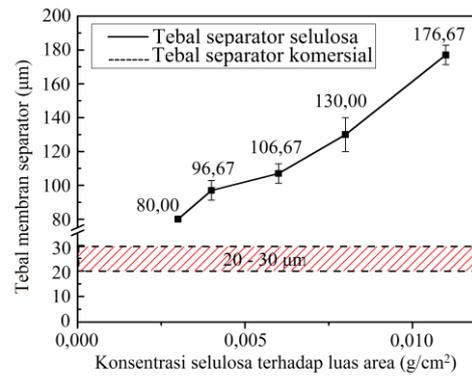
Berdasarkan hasil pengamatan secara visual yang diperoleh dari Gambar 2, dapat disimpulkan bahwa seiring dengan penurunan konsentrasi selulosa terhadap luas area dapat menurunkan kerapatan dan meningkatkan transparansi dari membran separator selulosa.

Ketebalan membran separator selulosa juga dipengaruhi oleh proses dispersi dari serat-serat selulosa. Semakin besar konsentrasi selulosa terhadap luas area maka serat-serat selulosa akan tersusun lebih rapat dan menumpuk satu sama lain sehingga menghasilkan membran separator yang lebih tebal. Sementara, makin kecil konsentrasi selulosa, maka serat-serat selulosa akan terdispersi lebih jauh satu sama lain dan menghasilkan kertas yang lebih transparan dan tipis. Proses dispersi ini dapat dilihat pada Gambar 3.



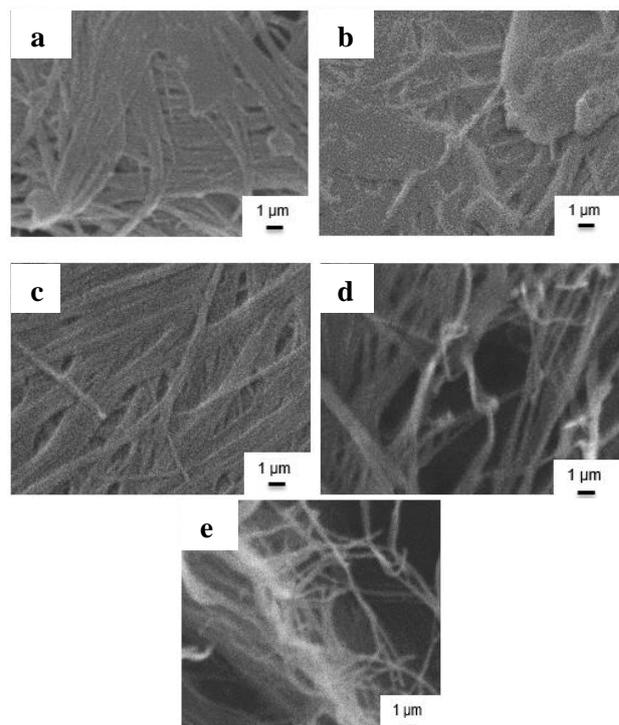
**Gambar 3.** Dispersi Selulosa (a) Tampak Samping, (b) Tampak Atas, dan (c) Setelah Pengeringan.

Hasil pengukuran ketebalan separator pada berbagai konsentrasi selulosa terhadap luas area dapat dilihat pada Gambar 4. Berdasarkan hasil pengukuran yang dilakukan, ketebalan separator rata-rata berkisar antara 80-176,67  $\mu\text{m}$ . Ketebalan membran separator yang dihasilkan mengalami penurunan seiring dengan penurunan konsentrasi selulosa terhadap luas area. Namun, membran separator selulosa yang dihasilkan pada penelitian ini masih lebih tebal dibandingkan dengan separator komersial yang umum digunakan yaitu berkisar antara 20-30  $\mu\text{m}$  [6].



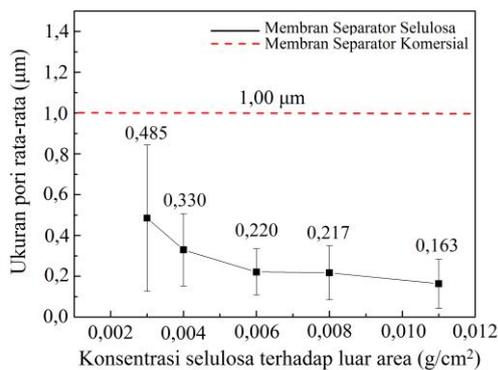
**Gambar 4.** Grafik Ketebalan Membran Separator Selulosa Berbahan Dasar Alga *Cladophora* terhadap Variasi Konsentrasi Selulosa.

Morfologi yang dihasilkan pada pengamatan SEM dari membran separator berbahan dasar selulosa alga *Cladophora* dapat dilihat pada Gambar 5. Berdasarkan Gambar 5 dapat disimpulkan bahwa seiring dengan penurunan konsentrasi selulosa terjadi penurunan kerapatan dari membran selulosa dan peningkatan ukuran pori pada membran separator selulosa.



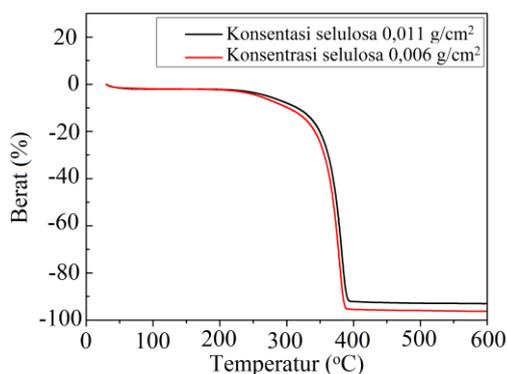
**Gambar 5.** Hasil SEM Membran Selulosa dengan Variasi Konsentrasi Selulosa terhadap Luas Area (a) 0,011 (b) 0,008 (c) 0,006 (d) 0,004 dan (e) 0,003  $\text{g}/\text{cm}^2$ .

Ukuran pori dari membran separator selulosa dapat dilihat pada Gambar 6. Membran separator dengan konsentrasi selulosa tinggi terhadap luas area menghasilkan rata-rata ukuran pori yang lebih kecil dari pada membran separator dengan konsentrasi selulosa yang lebih rendah. Syarat ukuran pori yang harus dipenuhi oleh suatu membran separator untuk dapat diaplikasikan pada LIB adalah  $< 1 \mu\text{m}$  [12]. Dari hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa membran separator selulosa telah memenuhi persyaratan ukuran pori untuk digunakan sebagai membran separator baterai.



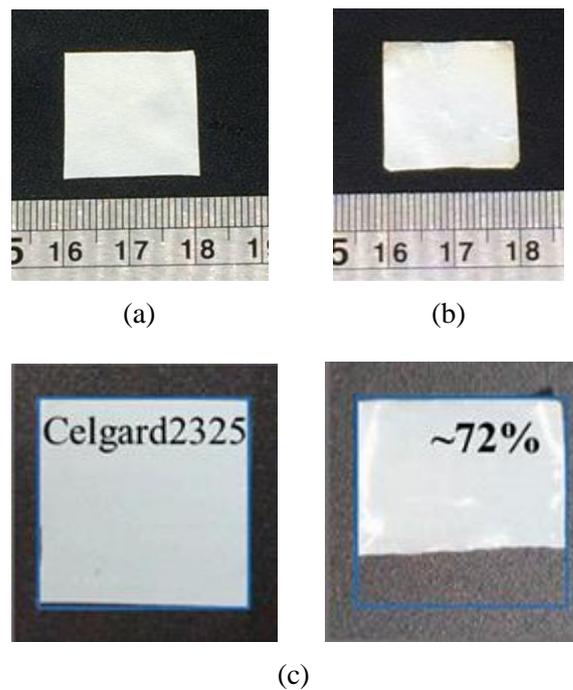
**Gambar 6.** Ukuran Pori Rata-rata dari Membran Separator Selulosa.

Ketahanan termal membran separator selulosa dapat dilihat pada Gambar 7. Berdasarkan Gambar 7 dapat disimpulkan bahwa membran separator selulosa mengalami dekomposisi pada temperatur  $\pm 350^\circ\text{C}$ . Ketebalan membran selulosa, tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan terhadap stabilitas termalnya.



**Gambar 7.** Grafik TGA pada Membran Selulosa dengan Konsentrasi Selulosa 0,011 dan 0,006 g/cm<sup>2</sup>.

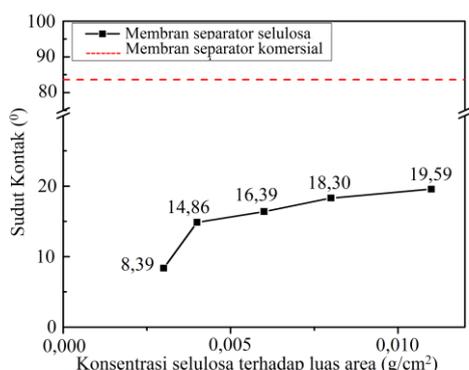
Kestabilan dimensi membran separator selulosa terhadap temperatur dapat dilihat melalui pemanasan hingga  $120^\circ\text{C}$ . Membran separator selulosa tidak mengalami perubahan dimensi seperti yang diperlihatkan pada Gambar 8. Jika dibandingkan dengan material separator komersial jenis Celgard2325 yang dipanaskan hingga temperatur  $120^\circ\text{C}$  akan terjadi *shrinkage*, separator hanya mampu menjaga kestabilan dimensi  $\sim 72\%$  dari ukuran aslinya. Kestabilan dimensi membran separator selulosa lebih baik dibandingkan dengan membran separator poliolefin (Celgard2325) yang hanya dapat menjaga kestabilan dimensi pada temperatur  $80^\circ\text{C}$  [6].



**Gambar 8.** Ketahanan Membran Separator Selulosa (a) Sebelum Dipanaskan (b) Setelah Dipanaskan hingga Temperatur  $120^\circ\text{C}$  dan (c) Separator Celgard2325 Setelah Dipanaskan hingga Temperatur  $120^\circ\text{C}$  [6]

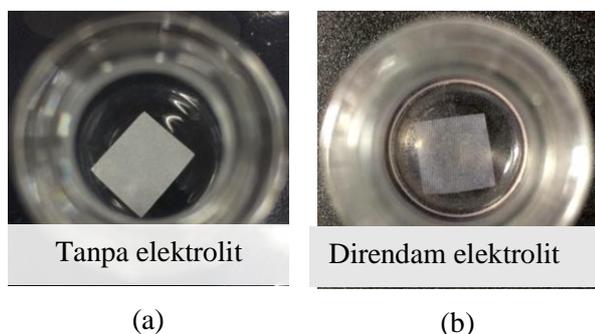
Pengujian sifat *wettability* dari membran selulosa dilakukan dengan menggunakan elektrolit cair  $\text{LiPF}_6$  yang biasa digunakan pada LIB. Perbandingan nilai sudut kontak membran selulosa pada berbagai konsentrasi terhadap nilai sudut kontak poliefin dapat dilihat pada Gambar 9. Hasil pengujian menunjukkan bahwa membran selulosa mampu menyerap elektrolit cair dengan cepat ketika ditetaskan pada permukaan membran. Nilai permukaan sudut kontak yang diperoleh pada membran selulosa lebih rendah dibandingkan dengan membran separator yang

berbasis polielofin yaitu  $84^\circ$  [5]. Hal ini menunjukkan bahwa membran selulosa cocok untuk digunakan sebagai separator baterai karena mampu meningkatkan sifat *wettability* terhadap elektrolit. Membran selulosa dengan konsentrasi selulosa tinggi menghasilkan sudut kontak yang lebih besar dibandingkan membran selulosa dengan konsentrasi rendah. Hal ini dapat terjadi karena membran selulosa dengan konsentrasi tinggi memiliki ukuran pori yang lebih kecil sehingga menghambat penyerapan elektrolit kedalam membran selulosa.



**Gambar 9.** Grafik Perbandingan Sudut Kontak Membran Separator Selulosa dan Poliolefin.

Membran selulosa mengalami perubahan warna dari putih menjadi transparan karena penyerapan elektrolit yang terjadi. Namun, setelah pengamatan selama 72 jam tidak terjadi perubahan dimensi ataupun geometri dari membran selulosa. Hal ini menunjukkan bahwa selulosa memiliki stabilitas yang baik terhadap elektrolit. Hasil pengujian stabilitas kimia membran selulosa dapat diperlihatkan pada Gambar 10.



**Gambar 10.** Pengujian Stabilitas Kimia Membran Selulosa (a) Sebelum dan (b) Sesudah Perendaman Elektrolit  $\text{LiPF}_6$  Selama 72 Jam.

## KESIMPULAN

Pada penelitian ini, membran separator selulosa yang diekstrak dari alga *Cladophora* dengan variasi konsentrasi selulosa terhadap luas area menghasilkan membran dengan ketebalan yang berbeda. Ketebalan membran separator yang dihasilkan berkisar antara 80-176  $\mu\text{m}$ . Makin rendah konsentrasi selulosa yang digunakan maka dihasilkan pori yang lebih besar pula. Ketahanan termal membran separator selulosa menunjukkan dekomposisi pada temperatur  $350^\circ\text{C}$ . Sudut kontak pada membran separator selulosa lebih rendah dibandingkan separator komersial sehingga menghasilkan sifat *wettability* yang lebih baik. Membran separator selulosa memiliki ketahanan kimia yang baik terhadap elektrolit. Berdasarkan hasil pengujian dapat disimpulkan bahwa membran separator berbahan dasar selulosa memiliki potensi untuk dijadikan membran separator baterai.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih kami haturkan kepada LPPM ITB atas dana Program Penelitian, Pengabdian kepada Masyarakat dan Inovasi ITB, serta Balai Besar Bahan dan Barang Teknik atas dukungannya dalam kegiatan penelitian ini.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] F. Jiang, L. Yin, Q. Yu, C. Zhong, and J. Zhang, "Bacterial Cellulose Nano Fibrous Membrane as Thermal Stable Separator for Lithium-ion Batteries," *J. Power Sources*, vol. 279, pp. 21–27, 2015.
- [2] R. Pan, "Cladophora Cellulose-based Separators for Lithium Batteries," Uppsala University, 2019.
- [3] H. Zhang, X. An, L. Liu, Z. Lu, H. Liu, and Y. Ni, "Preparation of Cellulose-based Lithium ion Battery Membrane Enhanced with Alkali-treated Polysulfonamide Fibers and Cellulose Nanofibers," *J. Memb. Sci.*, p. 117346, 2019.
- [4] W. Xie, W. Liu, Y. Dang, A. Tang, T. Deng, and W. Qiu, "Investigation on Electrolyte-immersed Properties of Lithium-ion Battery Cellulose Separator through Multi-scale Method," *J. Power Sources*, vol. 417, pp. 150–158, 2019.

- [5] J. Zhang *et al.*, “Sustainable, Heat-Resistant and Flame-retardant Cellulose-Based Composite Separator for High-Performance Lithium Ion Battery,” *Sci. Rep.*, vol. 4, pp. 1–8, 2014.
- [6] J. Sheng, R. Wang, and R. Yang, “Physicochemical Properties of Cellulose Separators for Lithium Ion Battery: Comparison with Celgard2325,” *Materials (Basel)*, vol. 12, 2019.
- [7] M. Nasir, R. Hashim, O. Sulaiman, and M. Asim, “Nanocellulose: Preparation Methods and Applications,” in *Cellulose-Reinforced Nanofibre Composites*, Penang: Elsevier, 2017.
- [8] P. Baweja, S. Kumar, D. Sahoo, and I. Levine, *Biology of Seaweeds*. Elsevier Inc., 2016.
- [9] K. Mihhels, “Recovery of Cellulose from Green Algae for Textile Manufacture,” Aalto University, 2017.
- [10] Sh.-P. Chang, “Comparison of the Structure and Properties Between the *Cladophora* and *Spirogyra* Filamentous Macroalga,” in *International Nanoelectronics Conference*, 2008, pp. 914–916.
- [11] R. Pan *et al.*, “Mesoporous *Cladophora* Cellulose Separators for Lithium-ion Batteries,” *J. Power Sources J.*, vol. 321, pp. 185–192, 2016.
- [12] P. Arora and Z. J. Zhang, “Battery Separators,” *Chem. Rev.*, vol. 104, 2004.

