

## ABSTRAK

# PEMBUATAN NANOSELULOSA DARI LIMBAH PADAT TAPIOKA DAN APLIKASINYA SEBAGAI KOMPONEN MEMBRAN POLIMER ELEKTROLIT BATERAI ION LITIUM

Oleh

**Sonny Widiarto**

**NIM: 30514006**

**(Program Studi Doktor Kimia)**

Indonesia adalah negara penghasil ubi kayu (*Manihot esculenta* Crantz) terbesar ketiga di dunia setelah Nigeria dan Brazil. Volume produksi ubi kayu Indonesia sekitar 24 juta ton per tahun. Sebagian besar produksi tersebut dimanfaatkan oleh industri tapioka dengan menyisakan limbah padat berupa ampas (*bagasse*) dan kulit (*peel*) singkong. Kandungan selulosa yang cukup tinggi dari ampas singkong (26,2% dari berat kering) dan kulit singkong (40,5% dari berat kering) menjadi potensi yang besar sebagai sumber selulosa.

Beberapa dekade terakhir, penelitian di bidang selulosa mengarah kepada pembuatan nanoselulosa sebagai material unggul. Nanoselulosa memiliki berbagai keutamaan dan keunggulan, salah satu pemanfaatannya adalah sebagai komponen penguat (*reinforcing nanofiller*) pada membran polimer elektrolit dalam baterai ion litium. Baterai ion litium adalah salah satu energi alternatif yang menarik perhatian untuk dikembangkan. Membran polimer elektrolit telah menjadi bahan yang menarik untuk dikembangkan karena memiliki keunggulan untuk menggantikan elektrolit cair yang telah digunakan pada baterai ion litium pada umumnya. Kelemahan utama dari elektrolit cair adalah mudah menguap dan mudah terbakar pada penggunaan baterai pada suhu tinggi.

Oleh karena itu, tujuan dari penelitian ini adalah untuk memperoleh nanoselulosa dari bahan yang relatif murah, ramah lingkungan dan mempelajari sifat-sifatnya sehingga dapat dimanfaatkan untuk berbagai keperluan, di antaranya adalah sebagai komponen penguat pada matriks polimer elektrolit. Pemanfaatan ampas dan kulit singkong sebagai sumber selulosa diharapkan mampu mengatasi permasalahan lingkungan dan meningkatkan nilai tambah pada industri tapioka di Indonesia.

Penelitian ini terbagi menjadi tiga tahap; tahap pertama adalah mempelajari isolasi selulosa dari ongkok dan kulit singkong dengan menggunakan tiga metode (sulfat, nitrat dan alkali). Tahap kedua mempelajari pembuatan nanoselulosa (NS) dari selulosa yang diperoleh dengan menggunakan metode hidrolisis asam dan metode mekanik. Pada metode hidrolisis asam dilakukan optimasi konsentrasi asam, sedangkan pada metode mekanik menggunakan alat *high-shear homogenizer* dilakukan optimasi kecepatan pengadukan dan waktu pengadukan. Tahap ketiga mempelajari pembuatan membran nanokomposit polimer elektrolit dengan mencampurkan NS dengan poli(etilena oksida) (PEO) menggunakan metode

*solution casting* dengan mengoptimasi komposisi PEO:NS dan PEO:NS:LiClO<sub>4</sub>. Pada setiap tahap dilakukan karakterisasi menggunakan alat FTIR, XRD, TGA, DSC dan SEM. Ukuran partikel nanoselulosa ditentukan menggunakan metode DLS dan TEM; sifat mekanik membran nanokomposit diukur menggunakan alat uji tarik sedangkan konduktivitas ion membran nanokomposit diukur menggunakan alat Gamry Reference 3000 Potentiostat.

Pada tahap pertama, isolasi selulosa dari kulit singkong menggunakan metode alkali menghasilkan kandungan selulosa tertinggi dan rendemen hasil terbanyak masing-masing adalah 92,21% dan 17,8%. Indeks kristalinitas selulosa yang dihasilkan mengalami peningkatan, dari 23,41% menjadi 55,54%. Selulosa tersebut kemudian digunakan untuk pembuatan nanoselulosa pada tahap kedua penelitian ini. Dari hasil FTIR dan XRD, kedua metode yang digunakan (hidrolisis asam dan mekanik) menghasilkan spektra dan difraktogram yang mirip, dengan indeks kristalinitas nanoselulosa menggunakan metode hidrolisis asam dan mekanik masing-masing adalah 63,3% dan 62,1%. Ukuran panjang dan diameter rata-rata nanoselulosa diperoleh menggunakan TEM masing-masing adalah 121,14 nm dan 6,07 nm yang dihasilkan dengan metode hidrolisis asam, sedangkan metode mekanik memberikan hasil terbaik dengan panjang dan diameter rata-rata partikel berturut-turut adalah 178,24 nm dan 6,39 nm. Dengan mempertimbangkan efisiensi waktu, bahan kimia serta kebaruan dari penelitian maka digunakan nanoselulosa dari metode mekanik pada pembuatan nanokomposit di tahap selanjutnya.

Pada tahap ketiga, membran nanokomposit diperoleh dengan metode *solvent casting* menggunakan pelarut air. Penambahan NS ke dalam matriks PEO meningkatkan kuat tarik dan menurunkan regangan saat putus serta tidak memberikan pengaruh yang signifikan terhadap konduktivitas ion membran. Penambahan garam LiClO<sub>4</sub> ke dalam campuran PEO-NS menurunkan kuat tarik, meningkatkan regangan saat putus pada membran dan meningkatkan konduktivitas ion membran. Kondisi optimum membran diperoleh pada rasio PEO:NS= 80:20 dan LiClO<sub>4</sub> 15%. Penambahan garam LiClO<sub>4</sub> > 15% menghasilkan proses eksotermik yang besar pada uji sifat termal membran. Penambahan NS ke dalam membran PEO-LiClO<sub>4</sub> mampu meredam dan memperkecil proses eksotermik tersebut. Konduktivitas ion terbaik dari membran PEO-NS-LiClO<sub>4</sub> diperoleh pada komposisi PEO:NS:LiClO<sub>4</sub> = 72,25%:12,75%:15% dengan nilai yang terukur adalah  $2,28 \times 10^{-3} \text{ S.cm}^{-1}$ , sedangkan kuat tarik terbaik diperoleh pada komposisi PEO:NS:LiClO<sub>4</sub> = 63,75%:21,25%:15% dengan nilai 6,86 MPa.

Kata kunci: Selulosa, nanoselulosa, singkong (*Manihot esculenta* Crantz), kulit singkong, ampas singkong, membran polimer elektrolit, baterai ion litium.

## **ABSTRACT**

### **PREPARATION OF NANOCELLULOSE FROM INDUSTRIAL TAPIOCA SOLID WASTE AND ITS APPLICATION AS A COMPONENT OF LITHIUM-ION BATTERY POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE**

By

**Sonny Widiarto**

**NIM: 30514006**

**(Doctoral Program in Chemistry)**

*Indonesia is the third largest cassava (*Manihot esculenta* Crantz) producing country in the world after Nigeria and Brazil. The volume of cassava production in Indonesia is around 24 million tons per year. Most of the production is utilized by the tapioca industry by leaving solid waste in the form of bagasse and peels. The high cellulose content of cassava bagasse (26.2% of dry weight base) and cassava peel (40.5% of dry weight base) has great potential as a source of cellulose.*

*The last few decades, research in the field of cellulose has led to the making of nanocellulose as an advanced material. Nanocellulose has various advantages and excellence, one of its uses is as a reinforcing agent (reinforcing nanofiller) on the polymer electrolyte membrane in a lithium ion battery. Lithium ion battery is an alternative energy that attracts attention to be developed. Polymer electrolyte membranes have become an attractive material to be developed because they have the advantage of replacing liquid electrolytes that have been used in lithium ion batteries in general. The main disadvantage of the liquid electrolytes is its volatility and flammability when using batteries at high temperatures.*

*Therefore, the purpose of this research is to obtain nanocellulose from materials that are relatively inexpensive, environmentally friendly and study its properties so that it can be utilized for various purposes, including as a reinforcing component in the electrolyte polymer matrix. Utilization of cassava bagasse and peels as a source of cellulose is expected to be able to overcome the environmental problems and increase added value in the tapioca industry in Indonesia.*

*This research is divided into three stages; the first step is to study cellulose extraction from cassava bagasse and cassava peel using three methods (sulfate, nitrate and alkali). The second stage is to study the preparation of nanocellulose (NS) from cellulose via acid hydrolysis and mechanical methods. In the acid hydrolysis method, the acid concentration is optimized, whereas in the mechanical method using a high-shear homogenizer, the optimization of the rotor speed and stirring time is carried out. The third step is to study the preparation of polymer electrolyte nanocomposite membranes by mixing NS with poly(ethylene oxide) (PEO) using the solution casting method by optimizing the composition of PEO:NS and PEO:NS:LiClO<sub>4</sub>. At each stage, characterization was carried out using FTIR,*

*XRD, TGA, DSC and SEM. The size of the nanocellulose particles was determined using the DLS and TEM methods. The mechanical properties of nanocomposite membranes were measured using tensile testing instruments while the ionic conductivity of nanocomposite membranes was measured by the Gamry Reference 3000 Potentiostat.*

*In the first step, isolation of cellulose from cassava peel using the alkali method produced the highest cellulose content and the highest yield i.e. 92.21% and 17.8%, respectively. The crystallinity index of cellulose increased from 23.41% to 55.54%. The cellulose was then used for making nanocellulose in the second stage of this study. From the results of FTIR and XRD, the two methods used (acid hydrolysis and mechanics) produce similar spectra and diffractogram. The crystallinity index of nanocellulose from acid hydrolysis and mechanical methods are 63.3% and 62.1%, respectively. The average length and diameter of the nanocellulose produced by acid hydrolysis method were found 121.14 nm and 6.07 nm, respectively; while the mechanical method gave the average length and diameter of particles of 178.24 nm and 6.39 nm, respectively. Considering the time efficiency, the use of chemicals and novelty of the research, the nanocellulose from mechanical methods is used in the preparation of nanocomposites at a later stage.*

*In the third stage, the nanocomposite membrane is obtained by the solvent casting method using water as a solvent. The addition of NS to the PEO matrix increases the tensile strength and decreases the elongation at break and does not have a significant effect on the membrane ion conductivity. Addition of LiClO<sub>4</sub> salt to the PEO-NS mixture decreases tensile strength, increases elongation at break of the membranes and increases membrane ion conductivity. The optimum membrane conditions were obtained at a ratio of PEO:NS = 80:20 and 15% LiClO<sub>4</sub>. Addition of LiClO<sub>4</sub> > 15% produces a large exothermic process in the thermal properties of the membrane. The addition of NS into the PEO-LiClO<sub>4</sub> membrane can reduce the exothermic process. The best ion conductivity of the PEO-NS-LiClO<sub>4</sub> membrane was obtained in the composition of PEO:NS:LiClO<sub>4</sub> = 72.25%: 12.75%: 15% with a measured ionic conductivity value of  $2.28 \times 10^{-3} \text{ S.cm}^{-1}$ , while the best tensile strength was obtained in the composition of PEO:NS:LiClO<sub>4</sub> = 63,75%:21,25%: 15% with the value of 6.68 MPa.*

*Keywords: Cellulose, nanocellulose, cassava (Manihot esculenta Crantz), cassava peel, cassava bagasse, polymer electrolyte membrane, lithium-ion battery.*