

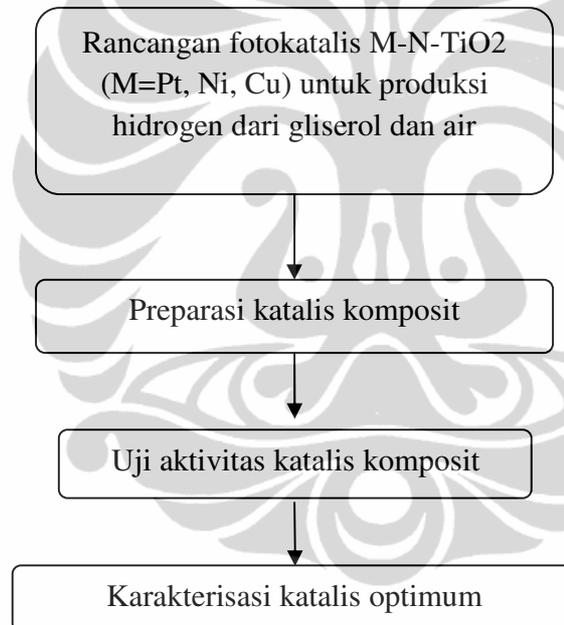
BAB 3

METODE PENELITIAN

3.1. Metode Penelitian Umum

Penelitian ini akan dilakukan di Laboratorium RKPA, Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik, Universitas Indonesia. Beberapa pengujian dan karakterisasi dilakukan di tempat lain, seperti karakterisasi UV-VIS DRS di MIPA Kimia UI Depok, XRD karakterisasi SEM/EDAX PTBIN BATAN Serpong.

Diagram alir penelitian dapat dilihat pada Gambar 3.1.



Gambar 3.1. Diagram Alir Penelitian Umum

Tujuan dari rekayasa katalis komposit ini adalah untuk mendapatkan fotokatalis berukuran nanometer yang aktif dan responsif terhadap sinar tampak, sehingga dapat digunakan untuk memproduksi hidrogen dari air dan gliserol. Pada aspek katalis, akan divariasikan metode sintesis dan konsentrasi dopan M (Ni, Cu, Pt sebagai pembanding).

Sedangkan dari aspek reaksi, akan divariasikan konsentrasi gliserol dan air yang digunakan sebagai bahan baku penghasil hidrogen.

3.2. Alat dan Bahan Penelitian

3.2.1. Peralatan Penelitian

3.2.1.1. Peralatan Sintesis Fotokatalis

- Beaker glass 100 ml, 250 ml, 500 ml
- Gelas ukur
- Corong
- Spatula
- Pipet tetes
- Alat sentrifugal
- Pengaduk ultrasonic
- Pemanas/furnace

3.2.1.2. Peralatan Uji Kinerja Fotokatalis dan Analisis Produk

- Fotoreaktor skala lab (Gambar 3.7)
- Hot plate dengan magnetic stirrer
- Lampu Visible Light
- Lampu UV
- *Gas Chromatography*
- Tabung Argon
- Tabung Nitrogen

3.2.2. Bahan Penelitian

3.2.2.1. Bahan Sintesis Fotokatalis

- TiO₂ P-25 Degussa
- Air demineralisasi
- Larutan NH₃
- Gas nitrogen
- H₂PtCl₆.6H₂O (prekursor Pt, sebagai dopan logam pembanding)

- $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (prekursor Ni)
- $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (prekursor)

3.2.2.2. Bahan Uji Kinerja Fotokatalis

- Air distilasi
- Gliserol
- Metanol

3.3. Prosedur Penelitian

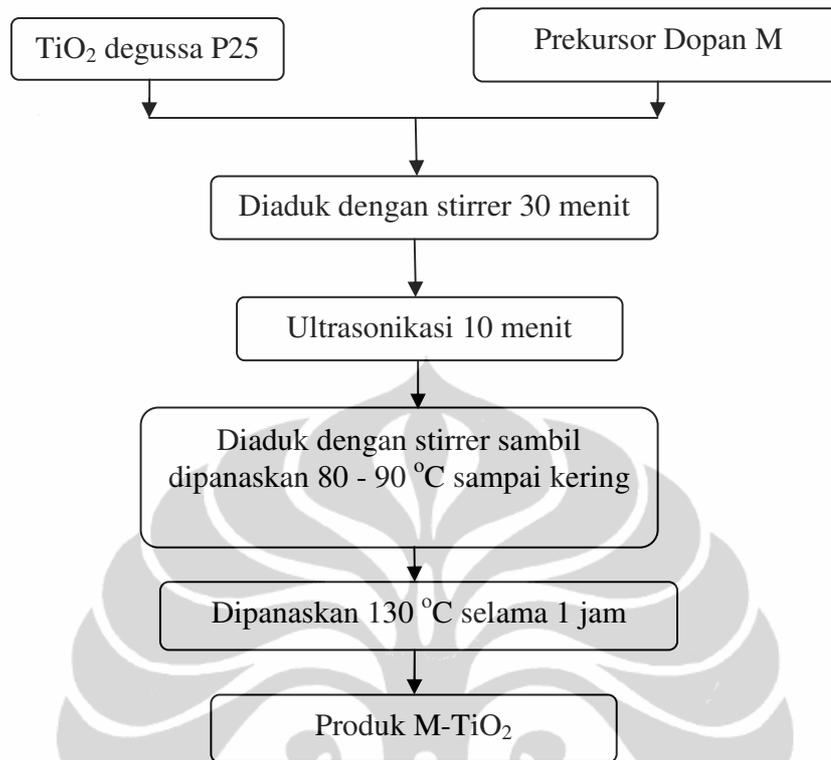
3.3.1. Sintesis Fotokatalis Nanokomposit M-N-TiO₂

Berdasarkan penelitian yang dilakukan sebelumnya, untuk sintesis M-N-TiO₂ bila sintesis dilakukan dengan mendopankan N ke TiO₂ lebih dulu dilanjutkan dengan dopan Pt, dicurigai sebagian N terlepas kembali (Anny, 2010). Karena itu, dilakukan sintesis M-TiO₂ lebih dulu kemudian dilanjutkan dengan dopping N. Sintesis M-TiO₂ dengan M adalah Cu dan Ni dilakukan dengan metode Impregnasi, sedangkan sintesis Pt-TiO₂ dilakukan dengan metode PAD (*Photo Assisted Deposition*). Hasil yang diperoleh kemudian didopan dengan N dengan menggunakan metode yang paling optimal yang diperoleh pada 3.3.1.

3.3.1.1 Sintesis Fotokatalis Nanokomposit M-TiO₂ dengan M= Cu dan Ni

Sejumlah TiO₂ degussa P25 ditambahkan precursor M (Cu dan Ni), dalam air demin. Larutan yang terbentuk kemudian di aduk dengan stirrer dan diultrasonikasi. Selanjutnya diaduk sambil dipanaskan pada suhu 80 °C-90 °C untuk menguapkan airnya. Hasil yang diperoleh kemudian dipanaskan pada suhu 130 °C selama 1 jam.

Skema tahapan metode impregnasi sebagai berikut:



Gambar 3.2. Diagram Alir Sintesis M-TiO₂ dengan metode Impregnasi (kalsinasi)

Penjelasan dari gambar 3.2 adalah sebagai berikut:

1. TiO₂ degussa P25 didopan dengan logam M dengan cara mencampurkannya dengan larutan prekursor dari logam M.
2. Logam M yang didopan pada metode ini hanya Ni dan Cu, dimana larutan Prekursor untuk Ni adalah Ni(NO₃)₂.6H₂O dan Cu adalah Cu(NO₃)₂.3H₂O.
3. Penambahan larutan prekursor untuk Ni dan Cu divariasikan dengan perbandingan berat masing-masing 0 %, 1 %, 3 %, 5 % dan 10 % berat TiO₂ degussa P25.
4. Larutan diaduk dengan stirrer selama 30 menit.
5. Selanjutnya dilakukan ultrasonikasi selama 10 menit pada campuran larutan di atas.
6. Larutan diaduk dengan stirrer sambil dipanasi pada suhu 80°C – 90°C untuk menguapkan airnya.

7. Larutan yang telah kering di atas dikalsinasi pada suhu 130 °C selama 1 jam
8. Selanjutnya telah diperoleh M-TiO₂

M-TiO₂ yang diperoleh dari sintesis di atas, selanjutnya didopan dengan N menggunakan metode dopan N yang paling optimal.

3.3.1.2 Sintesis Fotokatalis Nanokomposit Pt-TiO₂

Pt-TiO₂ dalam penelitian ini digunakan sebagai pembanding. Karena telah banyak penelitian menunjukkan bahwa hasil terbaik dalam sintesis Pt-TiO₂ adalah dengan metode PAD, diantaranya yang dilakukan oleh Huabing Yi (2008), *loading* Pt optimum untuk katalis Pt/TiO₂ adalah sebesar 1% dengan metode yang digunakan untuk pembuatan katalis Pt/TiO₂ adalah *photodeposition*. Oleh karena itu dalam penelitian ini khusus untuk Pt-TiO₂ disintesis dengan menggunakan metode PAD.

Proses sintesisnya dilakukan dengan cara sebagai berikut:

- 1) Menimbang 3 gram TiO₂ P25 Degussa
- 2) Membuat larutan metanol 10 % , 90% air demin.
- 3) Menimbang H₂PtCl₆ sebanyak 1% berat Pt yaitu sebesar 0.08 gr
- 4) Mencampurkan Degussa dan H₂PtCl₆ di atas dalam larutan reactor.
- 5) Melakukan proses PAD (*Photo-Assisted Deposition*) dalam reactor dengan meradiasikan sinar UV A selama 6 jam sambil diaduk dengan stirrer.
- 1) Memisahkan filtrat dari larutan dengan menggunakan sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 9000 rpm dan dilakukan 3 kali pencucian
- 2) Mengeringkan Pt-TiO₂ dengan hotplate dan blower pada suhu 90°C hingga kering
- 3) Mengeringkan Pt-TiO₂ dengan furnace pada suhu 130°C selama 1 jam lalu digerus untuk menghaluskan.

Pt-TiO₂ yang diperoleh dari sintesis di atas, selanjutnya didopan dengan N menggunakan metode dopan N yang paling optimal.

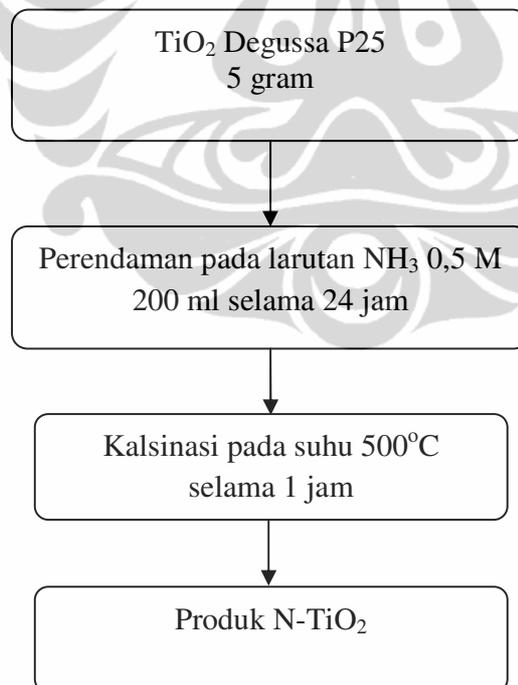
3.3.2. Sintesis Fotokatalis Nanokomposit N-TiO₂

Sintesis N-TiO₂ dilakukan dengan dua metode yaitu metode perendaman TiO₂ degussa P25 dalam larutan NH₃ 0,5 M dan metode menggunakan gas NH₃. Hasil dari

dua metode di atas kemudian dikarakterisasi untuk mengetahui banyaknya N yang terdopan.

3.3.2.1. Metode perendaman larutan NH_3

Pada metode ini, N- TiO_2 disintesis dengan cara merendam TiO_2 degussa P25 dalam larutan NH_3 . Pada saat pencampuran antara TiO_2 dengan larutan NH_3 , dilakukan pengadukan dengan stirrer dan juga dilakukan ultrasonikasi. Larutan ini kemudian dibiarkan selama 24 jam. Setelah itu larutan dipisahkan dengan menggunakan centrifuge dengan rpm 9000 selama 15 menit. Hasil yang diperoleh kemudian dikalsinasi pada suhu 500°C selama 1 jam. Proses kalsinasi ini diharapkan akan mengubah struktur kristal TiO_2 serta mendekomposisi ikatan NH_4^+ sehingga atom N dapat terlepas dari senyawa tersebut. Atom N akan terlepas dan masuk ke dalam struktur kristal TiO_2 dan mengambil posisi latis atom O dan berikatan dengan Ti membentuk ikatan kovalen (Anny, 2010). Skema tahapan sintesis N- TiO_2 dengan larutan NH_3 sebagai berikut:



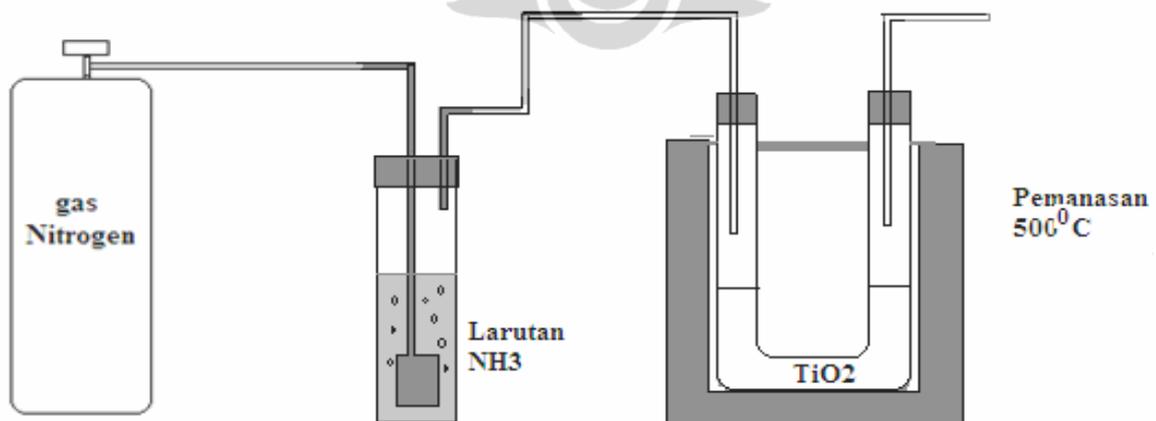
Gambar 3.3. Diagram Alir Sintesis N- TiO_2 dengan perendaman larutan NH_3

Penjelasan dari gambar 3.3 adalah sebagai berikut:

- 4) Menimbang 5 gram TiO_2 P25 Degussa
- 5) Menyiapkan larutan 200 ml NH_3 0,5 M.
- 6) Merendam TiO_2 P25 Degussa dalam larutan NH_3 0,5 M selama 24 jam.
- 7) Memisahkan filtrat dari larutan dengan menggunakan sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 9000 rpm
- 8) Mengeringkan N- TiO_2 dengan hotplate dan blower pada suhu 80°C - 90°C hingga kering
- 9) Mengeringkan N- TiO_2 dengan furnace pada suhu 130°C selama 1 jam lalu digerus untuk menghaluskan
- 10) Mengkalsinasi N- TiO_2 pada suhu 500°C selama 1 jam
- 11) Menempatkan N- TiO_2 pada wadah tertutup

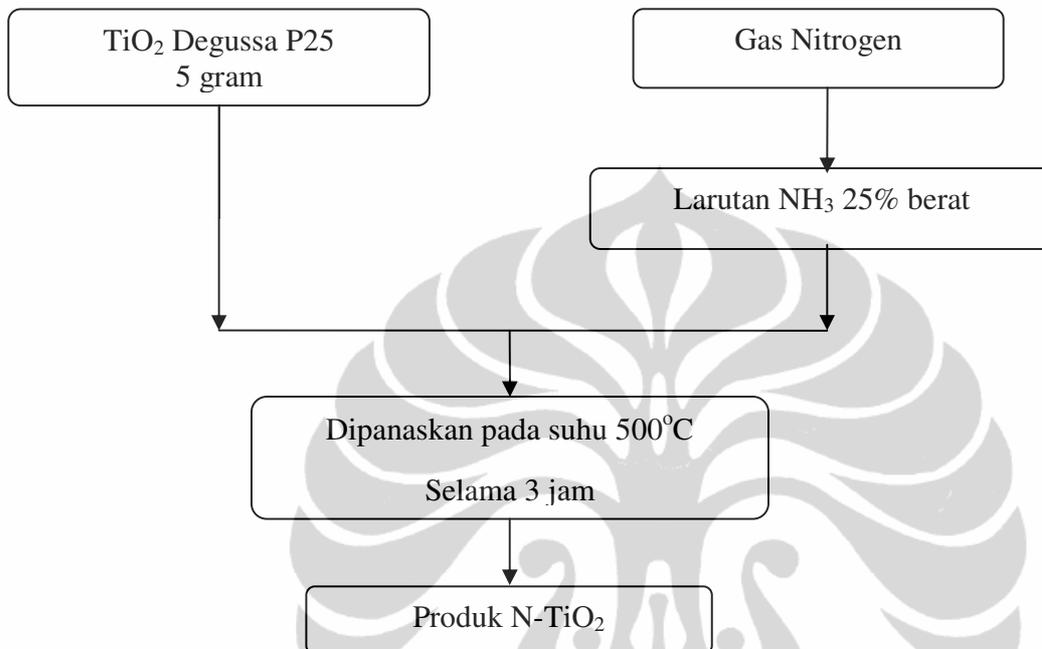
3.3.2.2. Metode Mengalirkan Gas NH_3

Pada metode ini, N- TiO_2 disintesis dengan cara mengalirkan gas nitrogen pada larutan NH_3 (bubling), kemudian dialirkan pada TiO_2 degussa P25 yang ditempatkan dalam tabung U dan dipanaskan pada suhu 500°C . seperti pada gambar 3.4 berikut.



Gambar 3.4. Skema susunan alat untuk sintesis N- TiO_2 menggunakan gas NH_3

Proses pemanasan TiO_2 dalam atmosfer N_2 dan NH_3 ini dilakukan selama 3 jam. Skema tahapan sintesis N- TiO_2 dengan gas NH_3 dapat dilihat pada gambar 3.5 berikut.



Gambar 3.5. Diagram Alir Sintesis N- TiO_2 menggunakan gas NH_3

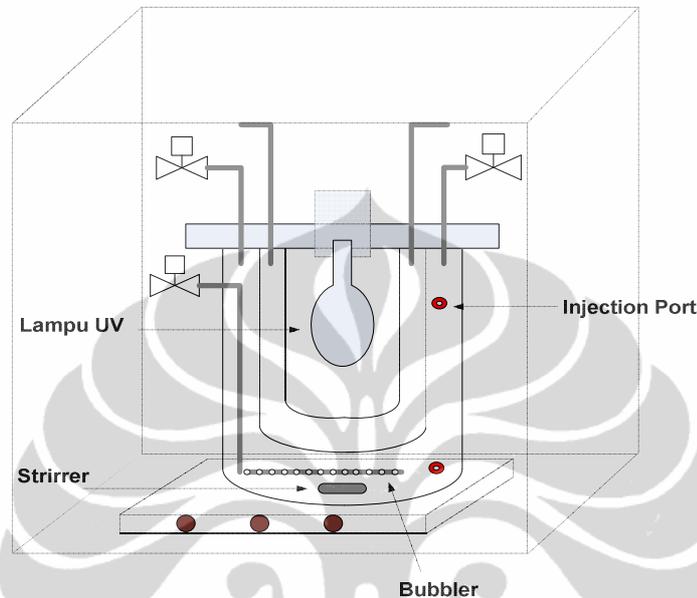
Penjelasan dari gambar 3.4 adalah sebagai berikut:

1. Menimbang 5 gram TiO_2 P25 Degussa
2. Menyiapkan larutan NH_3 25% wt.
3. Mengalirkan gas Nitrogen ke dalam larutan NH_3 25 % dengan laju alir 35 ml/menit yang dihubungkan dengan wadah TiO_2 yang dipanaskan pada suhu 500°C selama 3 jam seperti pada Gambar 3.4
4. Menempatkan N- TiO_2 pada wadah tertutup.

3.3.3. Uji Kinerja Fotokatalis

Reaktor yang akan digunakan adalah reaktor pyrex yang dilengkapi dengan magnetic stirrer dan *hotplate*. Reaktor berada di dalam kotak uji yang dilengkapi dengan

fitting lampu yang merupakan tempat penyangga lampu yang digunakan sebagai sumber foton, baik lampu UV ataupun lampu sinar tampak (sesuai kebutuhan). Skema reaktor dan kotak uji dapat dilihat pada Gambar 3.6 berikut.



Gambar 3.6. Reaktor Serta Kotak Uji untuk Pengujian Produksi Hidrogen dari Gliserol dan Air secara Fotokatalitik

Sebelum dilakukan pengujian produksi hidrogen, akan dilakukan terlebih dahulu *purging* pada udara dalam kotak uji agar oksigen yang terkandung pada sistem uji hilang. *Purging* dilakukan dengan mensirkulasikan gas Argon dengan tekanan 35 Torr. Adapun tujuan dilakukan *purging* adalah membuang gas oksigen agar tidak terjadi reaksi balik menjadi H_2O antara O_2 dan H_2 yang terbentuk.

Pengujian kinerja katalis dilakukan di dalam fotoreaktor dengan reaktan campuran air dan gliserol sebanyak 500 ml dengan konsentrasi gliserol 10%. Ke dalamnya dimasukkan katalis yang telah dipreparasi dengan divariasikan jenis dan *loading*-nya. Wadah tempat uji diletakkan di atas hot plate agar bisa diatur dan divariasikan suhunya selain juga agar dapat diaduk dengan magnetic stirrer untuk

meningkatkan kinetika reaksi. Setelah itu, lampu sinar tampak dinyalakan sehingga aktivitas fotokatalisis dimulai. Lamanya waktu reaksi adalah 5 jam.

Pengukuran konsentrasi hidrogen dilakukan dengan menggunakan *Gas Chromatograph Thermal Conductivity Detector* (GC TCD) secara *online*. Sampel gas diambil setiap selang waktu 1 jam kemudian komposisi tersebut dianalisa dengan *Gas Chromatograph*.

3.4. Rancangan Percobaan

Rancangan percobaan dibuat untuk melihat pengaruh berbagai parameter terhadap kinerja reaktor dalam memproduksi hidrogen dari campuran gliserol dan air. Pada percobaan ini, akan dilihat pengaruh empat parameter dalam menghasilkan hidrogen dari gliserol dan air. Keempat parameter itu adalah: metode sintesis, jenis dopan logam, loading dopan logam dan komposisi campuran gliserol-air.

3.4.1 Variabel Penelitian

Adapun variabel yang terkait pada penelitian ini adalah adalah:

- Variasi metode sintesis katalis nanokomposit N-TiO₂. Adapun variabel terikat dari variasi ini adalah konsentrasi N yang terdopan dalam katalis.
- Variasi loading dopan (Cu dan Ni) dalam fotokatalis, yaitu sebesar 0%, 1%, 3%, 5%, 10% , 20% dari berat N-TiO₂. Adapun variabel terikat dari variasi ini adalah jumlah mol hidrogen yang terbentuk.
- Variasi jenis dopan (Pt, Cu, Ni) dalam fotokatalis TiO₂. Adapun variabel terikat dari variasi ini adalah jumlah mol hidrogen yang terbentuk.
- Variasi konsentrasi gliserol dalam sistem campuran gliserol dan air dengan besar persentase gliserol 0%, 10%, 20% dan 50%. Adapun variabel terikat dari variasi konsentrasi gliserol ini adalah jumlah mol hidrogen yang terbentuk.

3.4.2. Pengaruh Metode Sintesis

Untuk melihat pengaruh metode sintesis dopan terhadap jumlah N yang terdopan, dilakukan variasi 2 metode sintesis N-TiO₂ yaitu dengan merendam dalam larutan NH₃ dan dengan menggunakan aliran gas NH₃. Jumlah sampel sebanyak 2. Fotokatalis N-TiO₂

yang diperoleh kemudian dikarakterisasi SEM-EDS untuk mengetahui banyaknya N yang terdopan.

3.4.3. Pengaruh Komposisi *Loading* Dopan Logam

Untuk melihat pengaruh Komposisi *loading* dopan terhadap jumlah hidrogen yang dihasilkan, jenis dopan logam yang digunakan adalah Cu dan Ni. Untuk masing-masing *Loading* dopan logam Cu dan Ni akan divariasikan dengan persentase berat sebesar 1%, 3%, 5%, 10% , 20%, sehingga jumlah sampel sebanyak 10. Setiap pengujian dilakukan selama 5 jam, dilakukan pada setiap jamnya dengan setiap pengujian 3 kali sampling.

3.4.4. Pengaruh Jenis Dopan Logam

Untuk melihat pengaruh jenis dopan terhadap jumlah hidrogen yang dihasilkan, jenis dopan logam yang digunakan adalah Pt, Cu dan Ni. Pt digunakan konsentrasi *loading* 1% sedangkan untuk Cu dan Ni digunakan *loading* yang optimal dari percobaan sebelumnya. Jumlah sampel sebanyak tiga. Setiap pengujian dilakukan selama 5 jam, dilakukan pada setiap jamnya dengan setiap pengujian 3 kali sampling.

3.4.5. Pengaruh Komposisi Campuran Gliserol-Air

Untuk melihat pengaruh komposisi campuran gliserol-air terhadap jumlah hidrogen yang dihasilkan, komposisi gliserol di dalam campuran akan divariasikan dengan persentase gliserol sebesar 0%, 10%, 20% dan 50%. Jumlah variasi sebanyak empat. Fotokatalis yang digunakan untuk pengujian ini adalah fotokatalis yang paling optimal dari Cu. Setiap pengujian dilakukan selama 5 jam, dilakukan pada setiap jamnya dengan setiap pengujian 3 kali sampling.

3.5. Karakterisasi Fotokatalis

Tahapan ini bertujuan untuk mengetahui sifat fisik dan kimia dari material yang telah dipreparasi. Data hasil karakterisasi katalis dapat digunakan sebagai parameter keberhasilan sintesis fotokatalis dan sebagai bahan optimasi fotokatalis. Karakterisasi yang dilakukan terdiri atas:

1. XRD untuk menentukan struktur kristal katalis (jenis, ukuran dan komposisi Kristal). XRD dilakukan di PTBIN-BATAN yaitu dengan menggunakan alat XRD merk Philips, dengan tabung katodanya adalah Cu.
2. UV-vis DRS untuk menentukan daya serap terhadap energi foton dan band gap fotokatalis. Karakterisasinya dilakukan di MIPA–UI Depok dengan menggunakan alat UV-vis DRS merk Shimadzu type UV2450.
3. SEM/EDAX untuk menentukan bentuk, morfologi nanomaterial, distribusi partikel serta komposisinya. Dilakukan di PTBIN-BATAN dengan menggunakan alat SEM/EDAX merk JEOL, type JSM 6510 LA.

