



SEMINAR NASIONAL KIMIA DAN PENDIDIKAN KIMIA VI

"Pemantapan Riset Kimia dan Asesmen Dalam Pembelajaran
Berbasis Pendekatan Saintifik"

Program Studi Pendidikan Kimia Jurusan PMIPA FKIP UNS
Surakarta, 21 Juni 2014



MAKALAH
PENDAMPING

KIMIA ANORGANIK
DAN KIMIA FISIKA

ISBN : 979363174-0

PENGARUH PENAMBAHAN ADITIF POLIETILENA GLIKOL PADA MEMBRAN ASIMETRIS CaTiO_3

Wahyu Prasetyo Utomo^{1,*}, Zulita Dian Utami², Khomsatu Dian Husnah², Maya Machfudzoh², Endang Purwanti Setyaningsih² dan Hamzah Fansuri²

¹Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya, Indonesia

²Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya, Indonesia

*Telp : +62 87861228242, email: h.fansuri@chem.its.ac.id

ABSTRAK

Pembuatan membran asimetris dengan metode inversi fasa dapat menghasilkan morfologi membran yang bervariasi tergantung pada jenis polimer dan zat aditif yang digunakan. Morfologi membran akan berpengaruh pada kinerja membran sebagai penghantar ion oksigen. Pada penelitian ini, perovskit CaTiO_3 disintesis dengan metode *solid state*. Membran perovskit CaTiO_3 kemudian disiapkan dengan metode inversi fasa menggunakan polieterimida (PEI) sebagai pengikat oksida perovskit, n-metilpirolidon (NMP) sebagai fasa pelarut, air sebagai fasa non pelarut dan polietilena glikol (PEG) sebagai zat aditif. PEG ditambahkan sebanyak 0; 0,3; 0,5 dan 0,7% dari massa total campuran PEI, NMP dan perovskit. Proses pencetakan menghasilkan membran mentah (*greenbody*) dengan ketebalan 0,5 mm. Pengamatan kedua sisi permukaan membran mentah menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM) menunjukkan bahwa kedua permukaan membran memiliki morfologi yang berbeda, dimana salah satu sisi permukaan menjadi lebih rapat. Penambahan PEG sebanyak 0,3% massa menyebabkan terbentuknya pori-pori pada kedua permukaan membran. Semakin banyak PEG yang ditambahkan, semakin rapat permukaan membran. Pengamatan terhadap penampang lintang membran menunjukkan bahwa bentuk dan morfologi pori pada badan membran mentah juga berbeda-beda sesuai dengan jumlah PEG yang ditambahkan. Semakin banyak penambahan PEG, semakin besar ukuran pori yang terbentuk di dalam badan membran.

Kata Kunci: membran asimetris, perovskit, inversi fasa, polietilena glikol

PENDAHULUAN

Oksida perovskit yang memiliki rumus umum ABO_3 , dimana A merupakan kation logam alkali, alkali tanah ataupun tanah jarang dan B merupakan kation logam transisi, merupakan material yang yang berpotensi dikembangkan dalam berbagai aplikasi. Selain dapat digunakan sebagai material sel bahan bakar padat (*Solid Oxide Fuel Cell*, SOFC), material ini juga dapat digunakan sebagai material membran untuk proses pemisahan gas oksigen [1].

Oksida perovskit dapat digunakan sebagai membran penghantar campuran ion oksigen dan elektron (*Mixed Ionic and Electronic Conducting*, MIEC) karena memiliki kekosongan oksigen pada kisi kristalnya. Kekosongan oksigen ini dapat dilewati oleh ion oksigen melalui reaksi oksidasi-reduksi sehingga menghasilkan konduktivitas ion oksigen. Penelitian-penelitian yang telah dilakukan terhadap fluks permeasi ion oksigen oksida ini menunjukkan bahwa konduktivitas ion oksigen oksida perovskit lebih tinggi daripada material yang lainnya [2,3,4].

Konduktivitas ion oksigen perovskit masih perlu ditingkatkan agar dapat mencapai target komersial yang

diharapkan sehingga dapat diterapkan dalam skala besar [5]. Konduktivitas ini dinyatakan dalam fluks oksigen. Peningkatan fluks oksigen dapat dilakukan dengan membuat membran asimetris yang terdiri dari lapisan tipis rapat dan lapisan pendukung berpori yang lebih tebal [6].

Salah satu metode untuk membuat membran asimetris adalah dengan metode inversi fasa. Metode ini memiliki kelebihan dibandingkan dengan metode yang lain seperti metode pendepositan langsung ataupun metode penekanan kering (*dry pressing*) yakni mampu menghasilkan membran dengan lapisan rapat yang sangat tipis [7]. Metode inversi fasa melibatkan setidaknya tiga sistem yang berperan, yakni polimer, pelarut dan non pelarut. Pada proses ini, polimer yang larut dalam pelarut pada fasa cair akan berubah kembali menjadi fasa padat akibat terlarutnya pelarut dalam nonpelarut [8].

Proses inversi fasa dapat dimodifikasi untuk menghasilkan morfologi membran tertentu. Proses modifikasi tersebut antara lain dilakukan dengan melakukan penambahan aditif pada campuran polimer. Polietilena glikol (PEG) dipilih sebagai aditif karena berdasarkan

penelitian yang telah dilakukan oleh Kim dan Lee. (1998), PEG dapat berperan dalam pembentukan pori pada membran [9].

Penelitian ini membahas tentang pengaruh penambahan aditif PEG pada membran mentah perovskit CaTiO_3 . Penambahan PEG diperkirakan juga akan berpengaruh pada morfologi dan pori yang terbentuk pada membran mentah tersebut. Pengamatan terhadap membran mentah perovskit CaTiO_3 sangat penting karena membran mentah menunjukkan bentuk awal dari membran keramik perovskit sebelum proses sintering. Membran polimer yang terbentuk sebagai membran mentah berperan sebagai templat atau rangka bagi pembentukan membran keramik perovskit.

METODE PENELITIAN

Pada penelitian ini, bahan yang digunakan adalah serbuk CaCO_3 , TiO_2 , Polieterimida (PEI), N-Metil-2-Pirolidon (NMP), Polietilena glikol 6000 (PEG), dan air.

Tahap pertama penelitian adalah sintesis oksida perovskit. Oksida perovskit disintesis dengan metode *solid state*. Tahap ini diawali dengan pencampuran dan penggerusan oksida-oksida penyusunnya yakni CaCO_3 dan TiO_2 . Bahan-bahan tersebut ditimbang sesuai dengan perhitungan stoikiometri, kemudian digerus hingga menghasilkan campuran padatan yang homogen. Hasil pencampuran ini disebut dengan prekursor. Prekursor yang diperoleh selanjutnya dikalsinasi secara bertahap sampai suhu 1200°C selama 4 jam. Serbuk yang dihasilkan dari proses tersebut selanjutnya dianalisa dengan difraktometer sinar-X (XRD Philips X'pert PN-1830 X-ray diffractometer) pada sudut 2θ $20-80^\circ$ menggunakan radiasi sinar $\text{CuK}\alpha$.

Tahap kedua adalah pembuatan membran rapat asimetris CaTiO_3 . PEI, NMP dan serbuk oksida perovskit CaTiO_3 dicampur dengan komposisi yang tepat untuk membentuk campuran lautan polimer sebagai dasar pembuatan membran polimer. Pencampuran dilakukan hingga terbentuk campuran yang homogen (pasta). PEG kemudian ditambahkan dengan komposisi 0,3; 0,5 dan 0,7% berat. Campuran kemudian dicetak pada plat kaca dengan ketebalan 0,5 mm. Lapisan tipis yang terbentuk pada plat kaca dimasukkan ke dalam bak koagulasi yang berisi air pada suhu ruang. Membran yang terbentuk kemudian dikeringkan pada suhu ruang dan kemudian dilakukan pengamatan morfologi membran yang telah terbentuk dengan *Scanning Microscopy Electron* (SEM) ZEISS EVO MA10.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Oksida perovskit CaTiO_3 disintesis dengan metode *solid state*, metode ini dipilih karena relatif sederhana dan dapat menghasilkan produk dengan kemurnian yang tinggi. Terjadinya reaksi secara fisik ditandai dengan berubahnya warna serbuk dari putih menjadi coklat muda setelah proses kalsinasi sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 1.

Hasil pencocokan serbuk perovskit CaTiO_3 menggunakan difraksi sinar-X ditunjukkan pada Gambar 2. Berdasarkan hasil analisa tersebut didapatkan informasi bahwa perovskit CaTiO_3 telah terbentuk dengan munculnya puncak-puncak khas CaTiO_3 pada difraktogram. Puncak-puncak tersebut sesuai dengan database difraktogram CaTiO_3 . Puncak-puncak tersebut mengindikasikan perovskit CaTiO_3 memiliki bentuk orthorhombik sesuai pada data ICSD No. 98-007-7005.

Preparasi membran asimetris perovskit CaTiO_3 dimulai dengan penimbangan bahan-bahan penyusun membran yaitu perovskit CaTiO_3 , polieter imida (PEI) dan polietilen glikol (PEG). perovskit CaTiO_3 merupakan bahan penyusun utama dalam pembuatan membran asimetris. PEI berfungsi sebagai template atau media dalam pembentukan membran asimetris CaTiO_3 . Pada penelitian ini variasi konsentrasi PEG yang digunakan adalah 0; 0,3; 0,5; dan 0,7%. Variasi tersebut bertujuan untuk mengetahui pengaruh konsentrasi aditif pada membran asimetris CaTiO_3 . Pelarut yang digunakan dalam preparasi ini adalah n-metil-2-pirolidon (NMP) serta non pelarut yang

digunakan adalah air. Proses inversi fasa menghasilkan membran mentah untuk masing-masing konsentrasi PEG.



Gambar 1.1 Oksida perovskit (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi

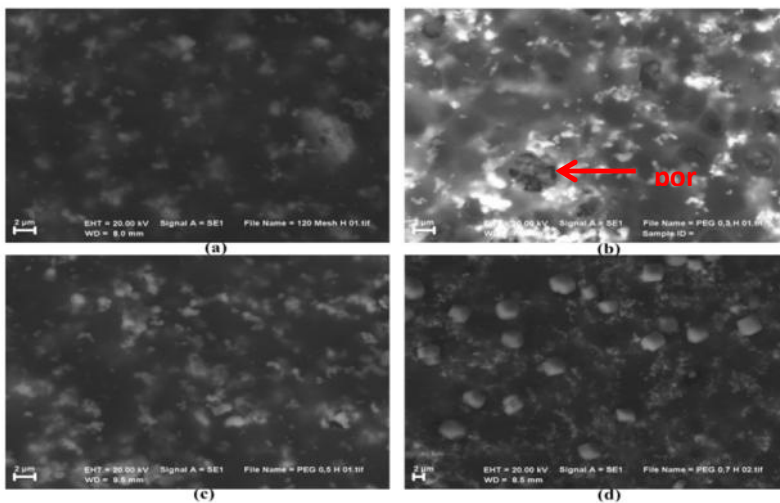
Hasil pengamatan dengan SEM dapat dilihat pada Gambar 3-5. Gambar 3 menunjukkan permukaan pada lapisan rapat membran mentah. Pada gambar tersebut tampak bahwa membran mentah yang dibentuk dari perovskit dengan aditif sebanyak 0,3% memiliki pori pada permukaan rapatnya, sementara itu pori tidak ditemukan pada jumlah penambahan



Gambar 2. Hasil analisis Difraktogram sinar-X oksida perovskit CaTiO₃



Gambar 2. Hasil analisis Difraktogram sinar-X oksida perovskit CaTiO_3



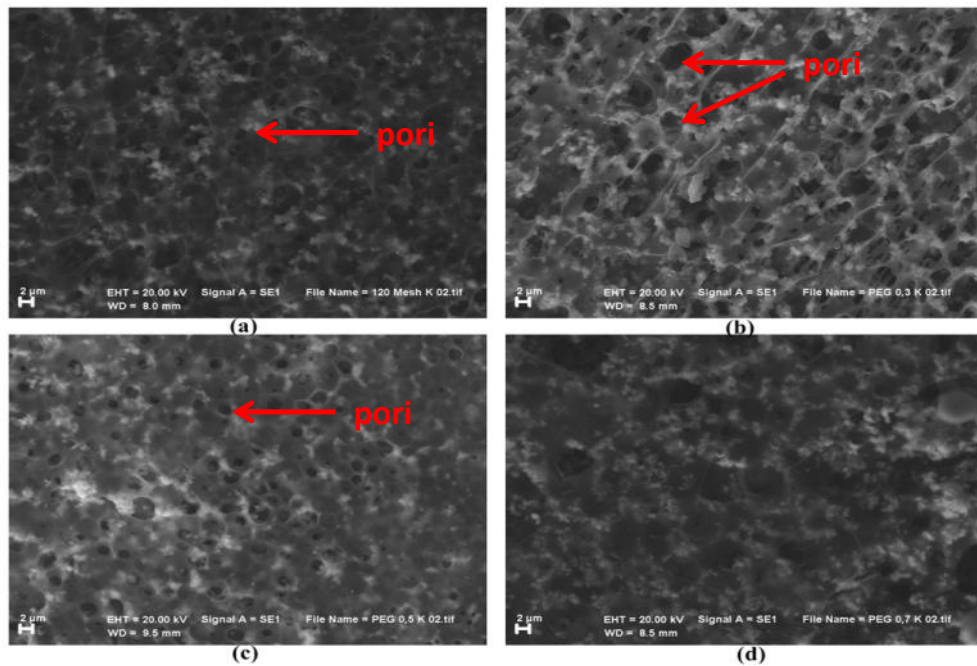
Gambar 3 Foto SEM permukaan lapisan rapat dengan konsentrasi PEG (a) 0; (b) 0,3; (c) 0,5 dan 0,7%

aditif yang lain. Hal tersebut disebabkan karena adanya aditif PEG yang tersebar pada permukaan membran. PEG yang berfungsi

sebagai pembentuk pori pada membran menyebabkan pembentukan pori di permukaan tersebut.

Gambar 4 menunjukkan permukaan lapisan pendukung berpori membran. Kecenderungan yang sama dengan permukaan tipis membran tampak pada gambar tersebut, dimana pada penambahan PEG sebanyak

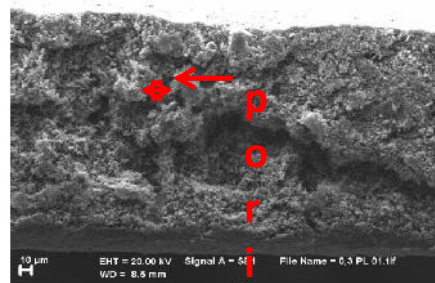
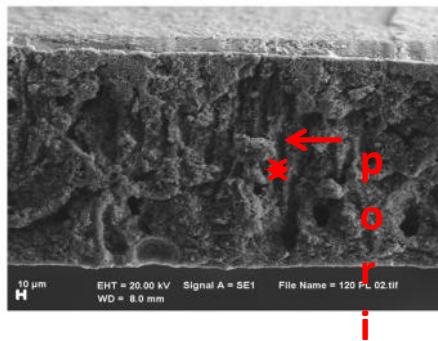
banyak pada komposisi mengindikasikan bahwa membran dengan penambahan PEG sebanyak 0,3% berpotensi menghasilkan membran keramik perovskit yang lebih berpori daripada yang lainnya. Pada



0,3% berat, pori yang terbentuk jauh lebih banyak daripada penambahan yang lainnya. Keberadaan pori yang

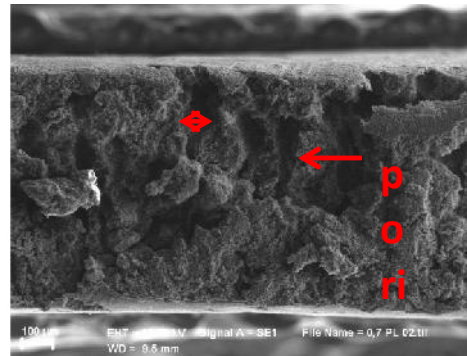
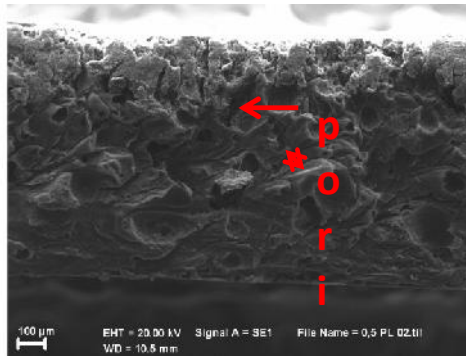
penambahan PEG yang lain yakni 0,5 dan 0,7%, semakin banyak jumlah PEG yang

Gambar 4 Foto SEM permukaan lapisan berpori dengan konsentrasi PEG (a) 0; (b) 0,3; (c) 0,5 dan (d) 0,7%



(b)

(a)



(c)

(d)

Gambar 5 Foto SEM penampang melintang dengan konsentrasi PEG (a) 0; (b) 0,3; (c) 0,5 dan (d) 0,7%

ditambahkan, semakin tinggi kerapatan permukaannya, yang menunjukkan bahwa semakin banyak polimer yang menyelimuti perovskit di permukaannya.

Pengamatan lebih lanjut dilakukan terhadap morfologi penampang lintang membran. Pengamatan ini akan memberikan gambaran yang lebih jelas tentang proses pembentukan pori di badan membran mentah selama proses inversi fasa. Penampang lintang membran mentah ditampilkan pada Gambar 5. Terdapat lapisan rapat pada tepi membran dan juga lapisan berpori. Pori yang terbentuk memiliki bentuk dan morfologi yang cukup berbeda, namun kecenderungannya sama yakni berbentuk memanjang (*finger-like*). Pori ini terbentuk pada saat proses

inversi fasa dimana ketika pencelupan dilakukan, NMP dan PEG yang berada pada pasta akan terlarut ke dalam air dan meninggalkan kekosongan ruang dari jalur pelepasan NMP dan PEG ke dalam aquades tersebut. Kekosongan itulah yang membentuk pori pada membran mentah.

Pori pada membran mentah 0% PEG memiliki lebar 10-20 μm , 0,3% PEG berukuran 10-30 μm , 0,5% PEG berukuran 20-40 μm sementara 0,7% PEG berukuran 40-50 μm . Ukuran-ukuran tersebut menunjukkan bahwa peningkatan jumlah PEG dapat meningkatkan ukuran pori pada badan membran mentah. Hal ini disebabkan karena penambahan PEG yang lebih banyak ke dalam polimer menyebabkan PEG akan ikut larut bersama dengan PEI dalam NMP. Ketika proses

pencelupan ke dalam air dilakukan, PEG juga akan larut dalam air. Semakin banyak PEG dalam pasta membran, semakin banyak pula PEG yang larut dalam air sehingga menghasilkan pori yang lebih besar pula.

KESIMPULAN

Perbedaan jumlah penambahan aditif menyebabkan perbedaan pada morfologi membran mentah CaTiO_3 yang terbentuk. Kecenderungan morfologi permukaan baik pada lapisan rapat maupun lapisan berpori menunjukkan bahwa peningkatan jumlah PEG dapat meningkatkan kerapatan pada lapisan permukaannya. Namun, pengaruhnya pada membran keramik perovskit masih perlu dikaji lebih lanjut melalui proses sintering membran mentah. Pengaruh aditif lebih tampak pada penampang lintang membran dimana semakin banyak jumlah PEG yang ditambahkan, semakin besar ukuran pori pada penampang lintangnya.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada berbagai pihak yang telah membantu dalam pelaksanaan penelitian dan penulisan makalah ini,

khususnya pada DIKTI atas hibah penelitian yang diberikan (Hibah IPTEK tahun 2013 dan Hibah Penelitian Strategis Nasional tahun 2014 dengan No. kontrak 07555.37/IT2.7/PN.01.00/2014) serta Laboratorium Energi, LPPM ITS atas bantuan peralatan dan instrumen yang diberikan.

DAFTAR RUJUKAN

- [1] Sunarso, J., Baumann, S., Serra, J.M., Meulenberg, W.A., Liau, S. dan Diniz da Costa, J.C., 2008, *Journal of Membrane Science*, 320, 13-41.
- [2] Li, N., Boseave, A., Deloume, J. P. and Gaillard, F., 2008, *Solid State Ionics*, 179, 1396–1400.
- [3] Xu, S.J., Thomson, W.J, 1999, *Chemical Engineering Science*, 54, 3839-3850.
- [4] Tan, X., Pang, Z. dan Li, K., 2008, *Journal of Membrane Science*, 310, 550-556.
- [5] Rasmussen, C. L., 2007, Ph.D. Thesis, Department of Chemical Engineering, Technical University of Denmark.

- [6] Jin, W., Li, S., Huang, P., Xu, N. dan Shi, J., 2001, Journal of Membrane Science, 185, 237-243.
- [7] Tan, X., Shi, L., Guizeng, H., Meng, Bo. Dan Li, S., 2012, Separation and Purification Technology, 96, 89-97.
- [8] Zhang, J.X., Zhang, X., X.Wang, X., 2008, Journal of Solid State Chem. 181, 393–398.
- [9] Kim, J.H. dan Lee, K.H.H., 1998, Journal of Membrane Science, 138, 153-163,

TANYA JAWAB

Pmakalah : Wahyu Utomo

Penanya : Fajariyah Ulfa

Pertanyaan:

Penambahan PEG adalah setelah membran dicetak dengan cara dimasukkan air, bagaimana membran dapat terbentuk

Jawaban

Akan larut otomatis karena pengaruh pelarut yang digunakan