



SEMINAR NASIONAL KIMIA DAN PENDIDIKAN KIMIA V
"Kontribusi Kimia dan Pendidikan Kimia dalam
Pembangunan Bangsa yang Berkarakter"
Program Studi Pendidikan Kimia Jurusan PMIPA FKIP UNS
Surakarta, 6 April 2013



MAKALAH
PENDAMPING

KIMIA ANORGANIK
(Kode : C-07)

ISBN : 979363167-8

PEMBUATAN MEMBRAN RAPAT PEROVSKIT $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ BERBENTUK TABUNG

Hamidatul Khusniyah, Nanik Hanifah, Hamzah Fansuri*

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

* Keperluan korespondensi; telp : 087861228242, email: h.fansuri@chem.its.ac.id

ABSTRAK

Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan membran rapat oksida perovskit $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF 7382) berbentuk tabung. Membran rapat LSCF 7382 berbentuk tabung tersebut dibuat dengan 2 cara yaitu melalui penekanan dan inversi fasa. Pada metode pertama, membran dibentuk dengan cetakan baja tahan karat dengan tekanan 5 ton menghasilkan tabung berongga dengan ketebalan dinding 2 mm dan diameter 8 mm dengan variasi suhu dan lama sintering. Pada metode kedua, membran dibuat berbentuk tabung pejal dengan diameter 1 mm dan suhu sintering 1250 °C. Data SEM menunjukkan bahwa suhu sintering yang tinggi dan waktu yang lebih lama pada proses sintering menghasilkan membran yang lebih rapat. Membran yang dibuat dengan metode pertama merupakan membran simetris. Sedangkan membran yang dibuat dengan metode yang kedua merupakan membran asimetris.

Kata Kunci : Oksida perovskit, LSCF 7382, membran rapat, inversi fasa

PENDAHULUAN

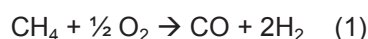
Indonesia memiliki beberapa kilang minyak yang berperan besar dalam mencukupi kebutuhan energi nasional maupun komoditas ekspor bahan bakar minyak [1]. Kilang-kilang minyak tersebut menghasilkan bahan bakar guna mencukupi kebutuhan energi nasional, tapi di sisi lain juga menghasilkan fraksi gas dari alkana berantai karbon rendah yakni gas

metana [2]. Gas metana (CH_4) yang tergolong salah satu dari tiga gas rumah kaca yang dapat

memicu semakin parahnya pemanasan global yang terjadi [3].

Ketersediaan minyak bumi yang semakin menipis berbanding terbalik dengan kebutuhan bahan bakar yang semakin meningkat. Oleh karena itu, salah satu alternatif yang mulai dikembangkan adalah pemanfaatan

gas metana dari limbah kilang minyak sebagai bahan baku untuk produksi *syngas* melalui oksidasi parsial metana. Reaksi oksidasi parsial metana menjadi *syngas* ($\text{CO} + \text{H}_2$) mengikuti persamaan



Syngas yang terbentuk melalui persamaan diatas merupakan *feedstock* yang penting untuk pembentukan metanol melalui reaksi Fischer-Tropsch, nantinya metanol ini bisa digunakan sebagai bahan bakar kembali [4].

Persamaan (1) menunjukkan jika pembentukan *syngas* membutuhkan oksigen agar oksidasi parsial metana dapat berlangsung, sehingga diperlukan suatu material yang dapat menghantarkan ion oksigen dalam proses pemisahan oksigen dari udara agar ion oksigen tersebut dapat bereaksi dengan gas metana. Membran penghantar ion oksigen berbasis oksida perovskit $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ atau LSCF merupakan salah satu membran yang banyak diaplikasikan untuk pemisahan oksigen ini [5][6][7]. Membran LSCF harus rapat dan tidak berpori sehingga tidak ada celah lagi untuk terjadinya difusi gas melalui pori-pori membran [8]. Untuk itu dilakukan peningkatan kerapatan membran melalui pengaturan suhu dan waktu sintering [9].

Faktor lain yang juga perlu diperhatikan selain kerapatan membran adalah fluks permeasi oksigen, yakni kemampuan membran untuk menghantarkan jumlah ion oksigen tiap satuan luas penampang membran [10]. Salah satu cara untuk meningkatkan fluks permeasi oksigen adalah dengan meningkatkan luas permukaan membran atau mengurangi ketebalan membran dan memodifikasi permukaan membran [11]. Membran dengan bentuk tabung mempunyai luas permukaan yang lebih luas dibandingkan dengan membran berbentuk *disc* yang sudah banyak digunakan [19].

Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan membran oksida perovskit $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ yang rapat dengan variasi suhu sintering, merujuk pada penelitian dari Rosseau dkk. (2009) [12] yang melaporkan bahwa substitusi La^{3+} oleh Sr^{2+} sebesar 30% pada $\text{LaCo}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ menghasilkan membran dengan stabilitas termal dan sifat katalitik yang baik pada proses reaksi oksidasi hidrokarbon menjadi *syngas*.

METODE PENELITIAN

Sintesis Serbuk Perovskit LSCF 7382

Serbuk oksida LSCF 7382 disintesis dengan metode kimia padat (*solid state*). Reagen yang digunakan adalah La_2O_3 , Co_3O_4 , $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ dan

Fe_2O_3 . Proses sintesis dimulai dengan mencampurkan semua reagen dengan jumlah stoikiometri tertentu dalam *ball mill*. Prekursor yang diperoleh kemudian dikalsinasi pada suhu 1000 °C selama 2 jam. Proses kalsinasi dilakukan dua kali disertai penggerusan ulang. Serbuk yang terbentuk selanjutnya dikarakterisasi dengan XRD (Phillips X'pert PN-1830 X-ray diffractometer) pada sudut 2θ 30° sampai 60° dengan laju 0,05°/menit menggunakan radiasi sinar Cu-K α untuk mengetahui fasa kristal yang terbentuk.

Pembuatan Membran Keramik LSCF 7382 Berbentuk Tabung serta Karakterisasinya

Membran LSCF 7382 berbentuk tabung berongga dibuat dengan diameter dalam 4 mm, diameter luar 8 mm, ketebalan 2 mm dan panjang 50 mm. Membran dibuat dari serbuk LSCF 7382 hasil sintesis, kemudian ditimbang untuk proses pencetakan menggunakan cetakan silinder dengan tekanan 2 ton. Membran tabung yang terbentuk selanjutnya disinter pada variasi suhu 1100 °C selama 32 jam dan 1250 °C selama 2 jam.

Membran LSCF 7382 berbentuk tabung pejal dibuat dengan diameter 1 mm dan panjang 50 mm. Metode yang digunakan adalah inversi fasa. Pembuatan larutan polimer dari campuran selulosa asetat dan solven dengan komposisi tertentu, kemudian

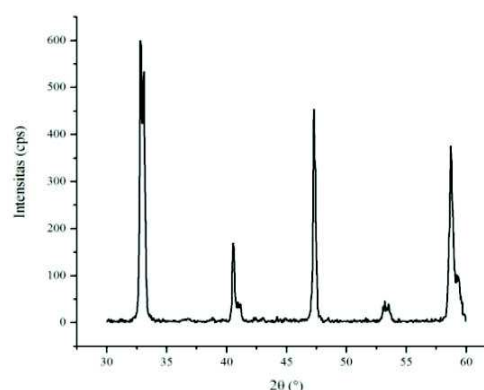
serbuk LSCF 7382 dimasukkan dalam larutan tersebut dan distirer sampai viskositas tertentu dan dicetak menggunakan *injection molding*. Selanjutnya hasil *injection* dimasukkan bak berisi air untuk proses koagulasi. Membran yang telah padat disinter pada suhu 1250 °C selama 2 jam.

Analisis morfologi permukaan membran menggunakan Scanning Electron Microscopy (SEM) ZEISS EVO M10.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis dan Karakterisasi Oksida Perovskit

Oksida perovskit LSCF 7382 disintesis menggunakan metode *solid state*. Hasil sintesis berupa serbuk hitam homogen, dan dikarakterisasi menggunakan XRD untuk mengetahui fasa produk yang terbentuk.



Gambar 1. Pola XRD oksida perovskit LSCF 7382 hasil sintesis

Gambar 1 menunjukkan adanya puncak karakteristik dari perovskit LaCoO_3 dengan struktur rombohedral

pada sudut 2θ yakni 32° , 33° , 40° , 41° , 47° , 58° dan 59° yang sesuai dengan data PDF nomor 25-1060. Difraktogram serbuk oksida perovskit LSCF tersebut juga menunjukkan adanya posisi puncak-puncak dengan intensitas tinggi dan tajam yang mengindikasikan bahwa oksida perovskit hasil sintesis bersifat kristalin [13].

Tabel 1. Posisi puncak dan intensitas difraktogram LSCF 7382

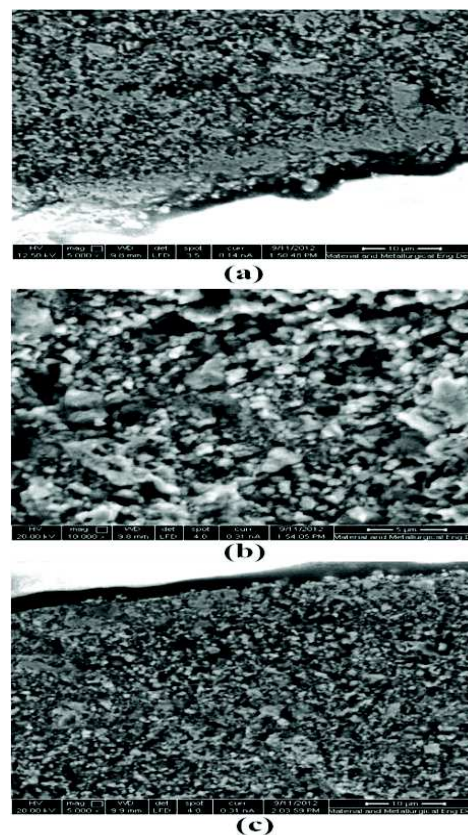
2θ ($^\circ$)	Intensitas (%)
32,86	100,00
33,14	82,00
40,57	27,88
47,33	72,62
58,75	59,76

Pembuatan Membran Keramik LSCF 7382 Berbentuk Tabung dengan Metode Penekanan

Pembuatan membran keramik berbentuk tabung berongga dilakukan dengan melibatkan proses pencetakan membran dan sintering membran. Membran dibuat dari serbuk oksida LSCF hasil sintesis yang dicetak menggunakan cetakan berbentuk silinder. Selanjutnya membran disinter pada suhu 1100°C selama 32 jam dan suhu 1250°C selama 2 jam. Perlakuan ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh suhu sintering yang diberikan terhadap kerapatan membran yang dihasilkan [14].

Membran keramik tabung

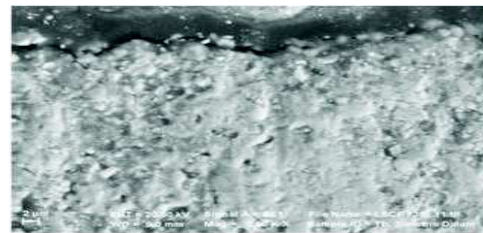
berongga yang dihasilkan setelah proses sintering selanjutnya dikarakterisasi menggunakan SEM untuk mengamati morfologi membran. Hasil analisa SEM ditunjukkan oleh Gambar 2 dan 3.



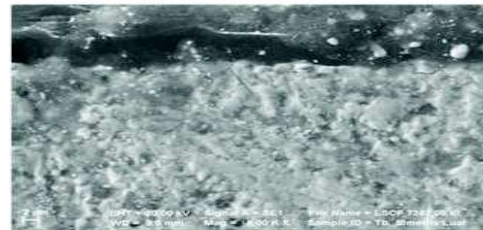
Gambar 2. Penampang lintang membran LSCF 7382 bentuk tabung berongga dengan sintering 1100°C selama 32 jam (a) bagian diameter dalam, (b) bagian tengah, (c) bagian diameter luar

Gambar 2 menunjukkan penampang lintang dari membran LSCF 7382 tabung berongga dengan sintering 1100°C selama 32 jam. Gambar 2.a menunjukkan penampang lintang membran di bagian diameter dalam, Gambar 2.b menunjukkan pada bagian tengah penampang lintang dan Gambar 2.c menunjukkan penampang

lintang pada bagian diameter luar. Ketiga bagian tersebut pada dasarnya menunjukkan kecenderungan yang sama yakni masih terdapatnya pori-pori di sebagian besar penampang lintang membran. Perbedaan tampak pada bagian tepi membran di bagian diameter dalam (Gambar 2.a) yang menunjukkan membran yang rapat pada tepi diameter dalamnya. Hal ini sebenarnya juga bisa diamati pada bagian tepi penampang lintang di bagian diameter luar, namun kerapatannya masih kurang jika dibandingkan bagian diameter dalam. Fenomena ini menunjukkan jika penekanan dengan tekanan sebesar 2 ton secara uniaksial hanya mampu membentuk kerapatan pada bagian luar namun belum bisa menghasilkan membran yang rapat pada bagian dalamnya. Hal ini disebabkan karena penekanan secara uniaksial menyebabkan tekanan yang lebih merata pada bagian luar daripada bagian dalam.



(a)



(b)

Gambar 3. Penampang lintang membran LSCF 7382 bentuk tabung berongga dengan sintering 1250 °C selama 2 jam (a) bagian diameter dalam, (b) bagian diameter luar

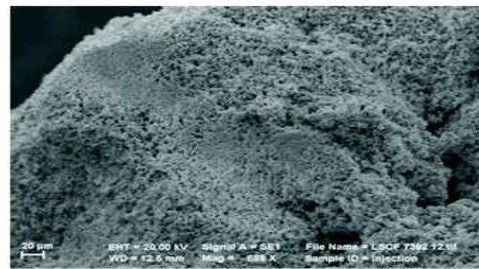
Gambar 3 menunjukkan penampang lintang membran LSCF 7382 tabung berongga dengan sintering 1100 °C selama 32 jam dan suhu 1250 °C selama 2 jam. Gambar 3.a menunjukkan penampang lintang membran di bagian diameter dalam, dan Gambar 3.b menunjukkan penampang lintang pada bagian diameter luar. Kedua bagian tersebut menunjukkan kecenderungan yang sama yakni sudah membentuk membran dengan kerapatan tinggi. Fenomena ini menunjukkan bahwa semakin tinggi suhu sintering maka waktu yang dibutuhkan partikel untuk bergabung dengan partikel yang lain semakin cepat dan hasilnya lebih rapat[15]. Sinterring membran keramik perovskit $\text{La}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ dan $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ pada 1250 °C selama 3 jam menghasilkan kerapatan

membran lebih tinggi dibandingkan dengan sintering pada 1150 °C selama 6 jam[16]. Dengan demikian suhu sintering memberikan pengaruh yang lebih signifikan terhadap kerapatan membran[14][17].

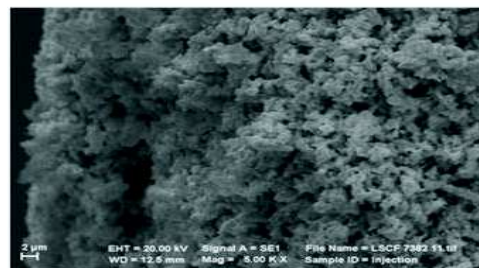
Pembuatan Membran Keramik LSCF 7382 Berbentuk Tabung dengan Metode Inversi Fasa

Pembuatan membran keramik berbentuk tabung pejal dilakukan dengan melibatkan proses inversi fasa dan sintering membran. Membran dibuat dari serbuk oksida LSCF hasil sintesis dengan metode inversi fasa, karena ketebalan yang sangat kecil yakni 1 mm mampu dibentuk dengan metode tersebut. Selanjutnya membran disinter pada suhu 1250 °C selama 2 jam. Perlakuan ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh lama sintering yang diberikan terhadap kerapatan membran yang dihasilkan[14].

Membran tabung pejal yang dihasilkan setelah proses sintering selanjutnya dikarakterisasi menggunakan SEM untuk mengamati morfologi membran. Hasil analisa SEM ditunjukkan oleh Gambar 4 dan 5.



(a)

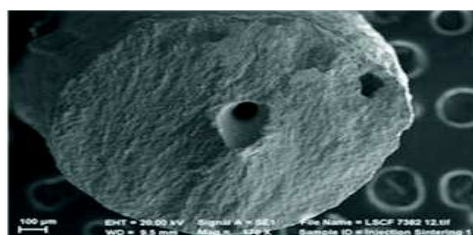


(b)

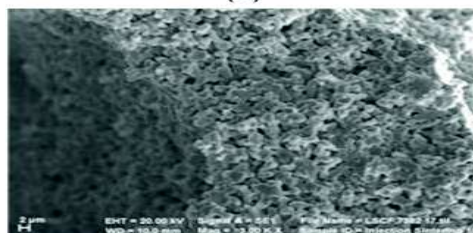
Gambar 4. Membran LSCF 7382 bentuk tabung pejal sebelum sintering (a) penampang lintang, (b) penampang bagian rapat

Gambar 4 menunjukkan penampang lintang dari membran LSCF 7382 berbentuk tabung pejal sebelum sintering. Gambar 4.a menunjukkan penampang lintang membran, Dari gambar tersebut diketahui bahwa membran berbentuk tabung pejal dengan metode inversi fasa membentuk membran asimetris, terdapat pori yang besar diantara membran yang rapat. Pori terbentuk dari proses *demixing* anrta solven dan non-solven saat koagulasi terjadi, bentuk pori *finger-like* menunjukkan bahwa laju non-solven lebih cepat daripada solven [18]. Gambar 4.b adalah gambar membran bagian rapat yang teramati masih membentuk pori-pori kecil di seluruh bagian. Hal ini menunjukkan bahwa sebelum sintering partikel-partikel oksida perovskit belum

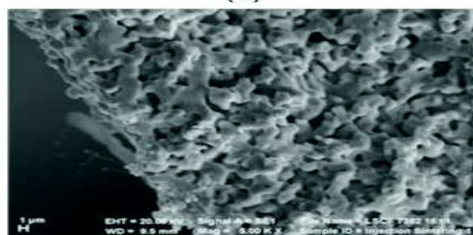
terkompaksi, terdiri dari butiran-butiran serbuk oksida, dan masih mengandung fasa pomiler didalamnya.. Oleh karena itu selanjutnya dilakukan sintering supaya membentuk membran yang lebih rapat.



(a)



(b)



(c)

Gambar 5. Membran LSCF 7382 bentuk tabung pejal dengan sintering 1250 °C selama 2 jam (a) penampang lintang, (b) penampang bagian rapat, (c) pembesaran penampang bagian rapat

Gambar 5 menunjukkan penampang lintang dari membran LSCF 7382 bentuk tabung pejal dengan sintering suhu 1250 °C selama 2 jam. Gambar 5.a adalah gambar penampang lintang membran, gambar tersebut menunjukkan bahwa membran yang telah disintering menghasilkan membran asimetris dengan pori yang

lebih besar pada bagian pori hasil *demixing* solven dan non-solven. Saat proses sintering, non-solven dan fasa polimer telah hilang dan menguap sehingga membentuk pori yang lebih besar. Gambar 5.b adalah gambar penampang melintang membran dan Gambar 5.c perbesaran dari Gambar 5.b, gambar tersebut menunjukkan pada bagian rapat sudah membentuk membran asimetris dengan kerapatan yang lebih tinggi bila dibandingkan pada gambar 4.b..Hal ini menunjukkan bahwa dengan sintering 1250 °C selama 2 jam antar partikel oksida perovskit sudah mulai terkompaksi tetapi belum terkompaksi secara sempurna masih terdapat celah, sehingga masih terdapat pori kecil tetapi lebih rapat jika dibandingkan dengan membran sebelum sintering. Fenomena ini menunjukkan bahwa dengan sintering, partikel perovskit akan bergabung dengan partikel yang lain sehingga antar partikel akan terkompaksi dan celah-celah yang kosong semakin terpenuhi [28].

KESIMPULAN

Membran keramik LSCF 7382 berbentuk tabung berhasil dibuat dari serbuk oksida perovskit LSCF yang disintesis dengan metode *solid state* dengan 2 cara yaitu melalui penekanan dan inversi fasa. Pada metode penekanan, membran dibentuk dengan cetakan baja tahan karat dengan

tekanan 5 ton menghasilkan tabung berongga dengan ketebalan dinding 2 mm dan diameter 8 mm dengan variasi suhu dan lama sintering. Pada metode inverse fasa, membran dibuat berbentuk tabung pejal dengan diameter 1 mm dan suhu sintering 1250 °C. Data SEM menunjukkan bahwa suhu sintering yang tinggi dan waktu yang lebih lama pada proses sintering menghasilkan membran yang lebih rapat. Membran yang dibuat dengan metode penekanan merupakan membran simetris. Sedangkan membran yang dibuat dengan metode inverse fasa merupakan membran asimetris.

UCAPAN TERIMA KASIH

Anggota tim MPE Kimia ITS dan semua pihak yang memberikan kontribusi pada penelitian yang dituliskan pada makalah ini

DAFTAR RUJUKAN

- [1] Susilo., 2006, *Studi penanganan limbah sisa solvent sisa analisa acidity untuk pengendalian pencemaran lingkungan di Pertamina UP IV Cilacap*, Thesis, Program Pasca Sarjana Universitas Diponegoro, Semarang.
- [2] Zuhra, C. F., 2003, *Penyulingan, pemrosesan dan penggunaan minyak bumi*, Jurusan Kimia, FMIPA, Universitas Sumatera Utara.
- [3] Minardi, S., 2009, *Pengelolaan lahan pertanian dan emisi gas rumah kaca.*, Jurusan Ilmu Tanah/Agroteknologi, Fakultas Pertanian, Universitas Sebelas Maret.
- [4] Luo, H., Wei, Y., Jiang, H., Yuan, W., Lv, Y., Caro, J. dan Wang, H., 2010, *Journal of Membrane Science*, **350**, 154-160.
- [5] Park, J., H., Kim, J., P., Kwon, H. dan T., Kim, J., 2008, *Desalination*, **233**, 73–81.
- [6] Świerczek, K., 2008, *Solid State Ionics*, **179**, 126–130.
- [7] Siebert, E., Roux, C., Boréave, A., Gaillard, F. dan Vernoux, P., 2011, *Solid State Ionics*, **183**, 40–47.
- [8] Chen, C. M., 2004, *Air Products and Chemicals, Inc.*, 227–237.
- [9] Mobius, A., Henriques, D. dan Marqus, T., 2009, *Journal of European Ceramic Society*, **29**, 2831–2839.
- [10] Balachandran, U., Dusek, J.T., Mieville, R.L., Poeppel, R.B., Kleefish, M.S., Pei, S., Kobylinski, T.P. dan Bose, A.C., 1995, *Applied Catalysis A: General*, **33**, 19.
- [11] Li, S., Hong, Q., Nanping, X. dan Jun, S., 1999, *Industrial and Developments Chemical Research*, **38**, 5028–5033.
- [12] Rosseau, S., Loidant, S., Delichere, P., Boreave, A., Deloume, J.P. dan Vernoux, P., 2009,

- Applied Catalysis B: Environment*,
88, 438–447.
- [13] Zhang. R, Villanueva. A, Alamdari. H dan Kaliaguine. S., 2006, *Journal of Molecular Catalysis*, **258**, 22-34.
- [14] Tan. L, Gu. X, Yang. Li, Zhang. L, Wang. C dan Xu. N., 2003, *Separation and Purification Technology*, **212**, 157–165.
- [15] Mosadeghkhah. A, Alae. M. A dan T. Mohammad., 2007, *Material & Design*, **28**, 1699–1706.
- [16] Tan. X, Wang. Z dan Li. K., 2010, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **49**, 2895–2901.
- [17] Martynczuk. J, Arnold. M and Feldhoff. A., 2008, *Journal of Membrane Science*, **322**, 375–382.
- [18] Deshmukh, S.P., Li, K., 1998, *Journal of Membrane Science*, **150**, 75-85.
- [19] Li, K., Tan, X., Liu, Y., 2006, *Journal of Membrane Science*, **272**, 1-5.