



TESIS - SK142502

**Pengaruh Kombinasi Aditif PEG dan H<sub>2</sub>O  
Terhadap Morfologi Pori Membran Datar  
Asimetris La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> dan  
La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>**

Rendy Muhamad Iqbal  
01211550012001

Dosen Pembimbing :  
Hamzah Fansuri, Ph.D  
Dr. Djoko Hartanto, M.Si

PROGRAM MAGISTER  
BIDANG KEAHLIAN KIMIA ANORGANIK  
DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS ILMU ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2018



THESIS - SK142502

**Effect of Combination between PEG and H<sub>2</sub>O as Additive on Pore's Morphology of Asymmetric Flat Membrane La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> and La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>**

Rendy Muhamad Iqbal  
01211550012001

Supervisor:  
Hamzah Fansuri, Ph.D  
Dr. Djoko Hartanto, M.Si

MASTER PROGRAM  
INORGANIC CHEMISTRY  
DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
FACULTY OF SCIENCE  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2018

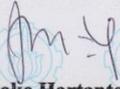
Telah disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar  
Magister Sains (M.Si)  
di  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

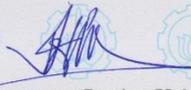
Oleh :  
Rendy Muhamad Iqbal  
NRP. 01211550012001

Tanggal Ujian : 30 Januari 2018  
Periode Wisuda : Maret 2018

Disetujui oleh :

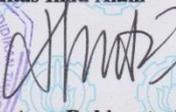
  
1. Hamzah Fansuri, M.Si, Ph.D (Pembimbing 1)  
NIP. 19691017 199412 1 001

  
2. Dr. Djoko Hartanto, M.Si (Pembimbing 2)  
NIP. 19621028 198803 1 001

  
3. Prof. Dr. rer. nat. Irmina Kris Murwani (Penguji)  
NIP. 19641224 198903 2 002

  
4. Dr. Hendro Juwono, M.Si (Penguji)  
NIP. 19600727 198701 2 001

Dekan  
Fakultas Ilmu Alam

  
Prof. Dr. rer. nat. Agus Rubiyanto, M.Eng.Sc  
NIP. 19650619 198903 1 001

# **Pengaruh Kombinasi Aditif PEG dan H<sub>2</sub>O Terhadap Morfologi Pori Membran Datar Asimetris La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> dan La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>**

Nama : Rendy Muhamad Iqbal  
NRP : 01211550012001  
Dosen Pembimbing : 1. Hamzah Fansuri, Ph.D  
2. Dr. Djoko Hartanto, M.Si

## **ABSTRAK**

Membran perovskit (La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> dan La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>) merupakan membran asimetris yang mampu menghantarkan oksigen dan dapat dimanfaatkan untuk berbagai keperluan seperti pemisahan gas, *solid oxide fuel cell* dan oksidasi parsial metana. Kemampuan membran perovskit dalam menghantarkan oksigen dipengaruhi oleh morfologi dan struktur pori membran. Membran dengan morfologi asimetris (memiliki lapisan rapat dan berpori) memiliki kinerja yang baik untuk menghantarkan oksigen. Morfologi membran dapat didesain dengan penambahan aditif pada larutan *dope*. Penelitian ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh aditif terhadap morfologi dan struktur pori, serta kinerja untuk menghantarkan oksigen dari membran perovskit. Aditif yang digunakan pada penelitian ini yaitu Polietilen Glikol (PEG) dengan berat molekul 8000 dan air, serta variasi rasio PEG : H<sub>2</sub>O = 5 : 0 ; 4,5 : 0,5; 4 : 1 dan 3,5 : 1,5 % berat. Karakterisasi kristal perovskit dengan XRD, sedangkan morfologi dan struktur pori membran diamati dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM). Selain itu, membran yang masih mengandung polimer dikarakterisasi dengan TGA. Pengaruh aditif terhadap kinerja membran juga diamati dengan pengukuran fluks oksigen. Hasil SEM menunjukkan bahwa hampir semua membran asimetris yang difabrikasi memiliki struktur pori *finger like* dengan lapisan rapat yang tipis. Selain itu, hasil pengukuran fluks oksigen membran datar LSCF 7328 dengan rasio PEG : H<sub>2</sub>O = 0 : 0, 4 : 1 dan 5 : 0 % berat memiliki nilai masing-masing  $2.10^{-7}$ ;  $3,98.10^{-7}$  dan  $6,67.10^{-7}$  mol.s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>.

Kata kunci : Membran perovskit, La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3</sub>, La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>, Aditif

**Effect of Combination between PEG and H<sub>2</sub>O as Additive on  
Pore's Morphology of Asymmetric Flat Membrane  
La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> and La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>**

Name : Rendy Muhamad Iqbal  
NRP : 01211550012001  
Supervisor : 1. Hamzah Fansuri, Ph.D  
2. Dr. Djoko Hartanto, M.Si

**ABSTRACT**

Perovskite membrane (La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> and La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>) is asymmetric membrane that has ability to transfer oxygen and its can utilize for gas separation, solid oxide fuel cell, and partial oxidation of methane. The ability to transfer oxygen on perovskite membrane influenced by morphology and pore structure. The membrane that has asymmetric structure was having better performance for oxygen conducting. The aim of this research is to studying influence of additive on morphology, pore structure, and performance for oxygen conducting of perovskite membrane. In this research, Combination between PEG 8000 and H<sub>2</sub>O use as additive and its varied from 5 : 0, 4,5 : 0,5, 4 : 1, and 3,5 : 1,5 % berat.. Crystal structure of perovskite is characterized by XRD. Meanwhile, morphology and pore structure of membrane determined by *Scanning Electron Microscopy* (SEM). Membrane which still contain polymer should characterized by TGA. Performance of perovskite membrane was determined by the measurement of oxygen flux. SEM result represent each asymmetric membrane has finger like structure of their pores and dense layer also appear on cross section membrane. Moreover, oxygen flux value of LSCF 7328 with PEG : H<sub>2</sub>O ratio = 0 : 0, 4 : 1 dan 5 : 0 wt% were 2.10<sup>-7</sup>; 3,98.10<sup>-7</sup> dan 6,67.10<sup>-7</sup> mol.s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>, respectively.

Keyword : Perovskite membrane, La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3</sub>, La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>, Additive

## KATA PENGANTAR

Puji syukur kehadirat Allah SWT atas berkat dan rahmatNya sehingga Proposal Tesis yang berjudul “Pengaruh Kombinasi Aditif PEG dan H<sub>2</sub>O terhadap Morfologi Pori Membran Datar Asimetris La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> dan La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3-δ</sub>” dapat diselesaikan dengan baik. Tesis ini disusun sebagai prasyarat untuk menyelesaikan pendidikan S2 di program pascasarjana Departemen Kimia, Fakultas Ilmu Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya.

Penulis menyampaikan banyak terima kasih kepada :

1. Bapak Hamzah Fansuri, Ph.D dan Bapak Dr. Djoko Hartanto, M.Si, selaku dosen pembimbing yang telah memberikan arahan, bimbingan dan masukan selama penyusunan tesis.
2. Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc selaku dosen wali dan Kepala Departemen Kimia FMIPA ITS
3. Prof. Mardi Santoso, Ph.D selaku Kaprodi Pascasarjana Kimia FMIPA ITS
4. Ayahanda H. Ruslan Abdul Gani, S.H, Ibunda Hj. Noorhudah dan Abang Rendra Kahlil Gibran, S.H yang telah memberikan dukungan moral dan materil selama menyelesaikan studi S2 di Surabaya.
5. Assoc. Prof. Dr. Mohd Hafiz Dzarfan Othman, Dr. Siti Munira Jamil dan seluruh pihak Advanced Membrane Technology – Universiti Teknologi Malaysia atas bimbingan dan fasilitas riset yang telah diberikan.
6. Seluruh anggota tim penelitian *Material for Energy and Environment*, seluruh rekan-rekan mahasiswa S2 Kimia ITS khususnya Ahmad Anwaru Dawam, Vita Nur Iftitahiyah, Dhiwa Sasri Pradini, Eris Agustin, Rose Malina, Widya, Laili Khumaidah, anggota Laboratorium Kimia Material dan Energi, serta semua pihak yang telah mendukung hingga penyelesaian tesis.
7. Sahabat-sahabat tersayang dan seperantauan : Muhamad Reza Fahrizal, Haposan Pratama Gultom, Junaidi, Zikri Fathur Rahman, Achmad Ramadhan, Iqbal Maulana, Catur Ade Afrianti, Eka Rusmalina, Sukmawati

Eka Bima, Iqlima, Marliani, Adilla Adisty dan Adhe Maulana yang telah memberi dukungan moral dan menjadi keluarga baru selama perkuliahan S2 di Surabaya.

8. LPPM ITS atas dana penelitian di bawah Lab Based Education (LBE) Grant 2017 dengan nomor kontrak 820/PKS/ITS/2017.

Penulis menyadari sepenuhnya bahwa tesis ini tentu tidak lepas dari kekurangan, maka dari itu segala saran dan kritik yang membangun untuk kebaikan tesis sangat diperlukan. Semoga tesis ini memberikan manfaat bagi penulis maupun pembaca.

Surabaya, Desember 2017

Penulis

## DAFTAR ISI

BAB I PENDAHULUAN .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Rumusan Masalah .....	3
1.3 Tujuan.....	4
1.4 Manfaat.....	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI .....	5
2.1 Oksida Perovskit .....	5
2.2 Sintesis Oksida Perovskit .....	8
2.3 Membran .....	13
2.4 Fabrikasi Membran Datar Asimetris dengan Metode Inversi Fasa ..	14
2.5 Faktor-Faktor yang Mempengaruhi Morfologi Membran Datar Asimetris .....	17
2.5.1 Pengaruh <i>Binder</i> Polimer .....	17
2.5.2 Pengaruh Pelarut dan Nonpelarut.....	18
2.5.3 Pengaruh Penambahan Aditif.....	21
2.6 Sintering .....	25
2.7 Tinjauan Instrumen .....	26
2.7.1 Difraktometer Sinar-X (XRD).....	26
2.7.2 <i>Scanning Electron Microscopy</i> .....	27
2.7.3 <i>Thermogravimetry Analysis</i> (TGA) .....	28
2.7.4 Pengujian Sifat Mekanik Membran ( <i>Microhardness Vickers</i> ).....	29
BAB III METODOLOGI PENELITIAN .....	31
3.1 Alat dan Bahan .....	31
3.1.1 Alat .....	31
3.1.2 Bahan.....	31
3.2 Prosedur Penelitian.....	31
3.2.1 Sintesis LSCF 7328 dan LSM 73 .....	31
3.2.2 Fabrikasi Membran Datar Asimetris LSCF 7328 dan LSM 73 .....	32
3.2.3 Analisis <i>Thermogravimetry</i> (TG).....	34
3.2.4 Pengujian Kerapatan Membran dengan Metode Uji Tetes Air .....	34

3.2.5	Pengukuran Pori, Porositas dan Volume Pori Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	34
3.2.6	Karakterisasi <i>Thermomechanical Analyzer</i> (TMA).....	35
3.2.7	Pengujian Kekerasan Membran Rapat Asimetris .....	35
3.2.8	Pengukuran Fluks Oksigen Membran LSCF 7328 .....	35
3.3	Fabrikasi, Karakterisasi dan Pengujian Fluks Oksigen Membran <i>Hollow Fiber</i> LSCF 7328 .....	37
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN .....		39
4.1	Hasil Sintesis $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ (LSCF 7328) dan $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ (LSM 73).....	39
4.2	Fabrikasi Membran Datar Asimetris LSCF 7328 dan LSM 73.....	42
4.3	Hasil Analisis <i>Thermogravimetry</i> (TG).....	498
4.4	Hasil Pengujian Kerapatan Membran dengan Metode Tetes Air ....	50
4.5	Hasil Pengukuran Pori, Porositas dan Volume Pori Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	51
4.6	Pengujian Koefisien Ekspansi Termal dengan <i>Thermomechanical Analyzer</i> (TMA).....	54
4.7	Hasil Pengujian Kekerasan Membran dengan Microhardness Vickers .....	56
4.8	Hasil Pengukuran Fluks Oksigen Membran Datar LSCF 7328.....	58
4.9	Fabrikasi, Karakterisasi dan Pengukuran Fluks Oksigen Membran <i>Hollow Fiber</i> LSCF 7328 .....	61
BAB V PENUTUP.....		69
5.1	Kesimpulan .....	69
5.2	Saran .....	69
DAFTAR PUSTAKA .....		71

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Struktur Perovskit.....	5
Gambar 2.2	Struktur Perovskit yang Memiliki Kekosongan Oksigen.....	6
Gambar 2.3	Distorsi kubus menjadi ortorombik.....	7
Gambar 2.4	Difraktogram $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$ dengan rasio bola : sampel = 8:1 (A) 6 jam penggerusan dengan kecepatan (a) 300, (b) 400, (c) 500, dan (d) 600 rpm (Côte dkk., 2013) .....	10
Gambar 2.5	Difraktogram $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$ dengan kecepatan 500 rpm dan durasi penggerusan (a) 2, (b) 4, dan (c) 6 jam (Côte dkk., 2013) ...	10
Gambar 2.6	Difraktogram $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ dengan berbagai waktu penggerusan (jam) (Zhang dkk., 2000) .....	12
Gambar 2.7	Difraktogram $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ yang disintesis dengan metode : (a) komersil ; (b) sol-gel ; dan (c) kombinasi <i>mechanochemical</i> dan <i>solid state</i> (Grabowska dan Trawczy, 2010) .....	13
Gambar 2.8	Membran datar asimetris (Mulder, 1996).....	14
Gambar 2.9	Mekanisme pertukaran pelarut dan nonpelarut.....	15
Gambar 2.10	Foto SEM membran perovskit dengan struktur pori : (a) <i>finger like</i> dan (b) <i>sponge like</i> .....	15
Gambar 2.11	Penampang lintang membran datar asimetris $\text{CaTiO}_3$ (Setyaningsih dkk., 2016).....	16
Gambar 2.12	Membran keramik yang difabrikasi dengan pelarut : (a) DMSO dan (b) NMP.....	20
Gambar 2.13	Morfologi membran $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ dengan nonpelarut : 50% Air: 50% NMP (A-50) ; 30% Air:70% NMP (A-70) ; 10% Air: 90% NMP (A-90) ; 50% Etanol: 50% NMP (B-50) ; 30% Etanol:70% NMP (B-70) ; dan 10% Etanol: 90% NMP (B-90) .....	20
Gambar 2.14	Efek penambahan PEG dengan berbagai berat molekul : (a) 400, (b) 6000 dan (c) 20.000 Da (Chakrabarty dkk., 2008).....	22
Gambar 2.15	Membran CA dengan penambahan aditif PEG (a) 0% ; (b) 5% dan (c) 10% (Saljoughi dkk, 2010) .....	22
Gambar 2.16	Proses densifikasi partikel .....	25

Gambar 2.17 Morfologi membran $\text{SrSc}_{0,1}\text{Co}_{0,9}\text{O}_3$ dengan berbagai suhu sintering (Zeng dkk., 2015).....	26
Gambar 2.18 Prinsip Difraksi Sinar X .....	27
Gambar 2.19 Foto SEM Membran LNb/NiO (Fontaine dkk., 2009).....	28
Gambar 2.20 Kurva TGA/DTA dari Perovskit SCS <sub>c</sub> .....	29
Gambar 2.21 Mekanisme Uji Kekerasan <i>Micro Vicker Hardness</i> .....	30
Gambar 3.1 Sketsa cetakan membran : (a) tampak atas dan (b) tampak samping .....	34
Gambar 3.2 Reaktor pengujian fluks oksigen .....	36
Gambar 3.3 Desain <i>double orifice spinner</i> .....	38
Gambar 3.4 Profil sintering membran <i>hollow fiber</i> LSCF 7328.....	38
Gambar 4.1 Campuran perkursor setelah penggerusan untuk sintesis : (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 73 .....	39
Gambar 4.2 Serbuk hasil sintesis: (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 73.....	40
Gambar 4.3 Difraktogram LSCF 7328 dan standart No PDF 00-025-1060 .....	41
Gambar 4.4 Difraktogram LSM 73 dan standart No PDF 00-035-1353.....	41
Gambar 4.5 Membran datar sebelum sintering : (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 7342	
Gambar 4.6 Termogram membran mentah LSCF 7328 dan LSM 73.....	49
Gambar 4.7 Uji tetes air pada membran datar.....	511
Gambar 4.8 Ukuran Pori Membran.....	52
Gambar 4.9 Porositas Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	53
Gambar 4.10 Volume Pori Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	53
Gambar 4.11 Kurva Pemuaian Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	55
Gambar 4.12 Kekerasan Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	58
Gambar 4.13 Kurva Standard.....	60
Gambar 4.14 Fluks oksigen membran datar LSCF 7328 pada suhu 700°C .....	61
Gambar 4.15 Mekanisme Pertukaran Pelarut-Nonpelarut .....	63
Gambar 4.16 Penampang lintang membran <i>Hollow Fiber</i> LSCF 7328.....	63
Gambar 4.17 Foto SEM Membran <i>Hollow Fiber</i> dengan PEG 3 % berat : (a) Permukaan luar, (b) Permukaan dalam, (c) Penampang lintang, dan (d) Penampang lintang dengan perbesaran yang lebih tinggi .....	64

Gambar 4.18 Foto SEM Membran <i>Hollow Fiber</i> dengan PEG 5 % berat : (a) Permukaan luar, (b) Permukaan dalam, (c) Penampang lintang, dan (d) Penampang lintang dengan perbesaran yang lebih tinggi .....	65
Gambar 4.19 Kekuatan mekanik membran <i>hollow fiber</i> LSCF 7328 .....	66
Gambar 4.20 Fluks oksigen membran <i>hollow fiber</i> LSCF 7328 pada suhu 700°C .....	67

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Fluks Oksigen dari Membran Perovskit (Sunarso dkk., 2008).....	8
Tabel 2.2	Rata-rata ukuran kristal ( $D_{XRD}$ ), dan parameter kisi LSCF yang disintesis dengan rasio bola : sampel = 8:1, 500 rpm .....	11
Tabel 2.3	Jenis-jenis polimer yang digunakan pada fabrikasi membran asimetris .....	18
Tabel 2.4	Pasangan pelarut dan nonpelarut pada fabrikasi membran keramik	19
Tabel 2.5	Aditif yang digunakan pada fabrikasi membran.....	23
Tabel 3.1	Komposisi perkursor untuk sintesis LSCF 7328 dan LSM 73.....	32
Tabel 3.2	Komposisi larutan cetak dan nonpelarut.....	33
Tabel 3.3	Komposisi larutan <i>dope</i> .....	37
Tabel 3.4	Parameter Ekstrusi .....	37
Tabel 4.1	Morfologi membran LSCF 7328 sebelum sintering .....	45
Tabel 4.2	Morfologi membran LSCF 7328 setelah sintering .....	46
Tabel 4.3	Morfologi membran LSM 73 sebelum sintering .....	47
Tabel 4.4	Morfologi membran LSM 73 setelah sintering.....	48
Tabel 4.5	Kehilangan massa dari membran mentah pada suhu 450-600°C ....	50
Tabel 4.6	Nilai Koefisien Muai Panas dari Membran LSCF 7328 dan LSM 73 .....	56
Tabel 4.7	Viskositas Larutan Dope.....	61











# **BAB I**

## **PENDAHULUAN**

### **1.1 Latar Belakang**

Teknologi membran dalam satu dekade terakhir ini menjadi perhatian para peneliti karena peran membran dalam menyelesaikan beberapa permasalahan. Salah satu jenis membran yang dikembangkan yaitu membran keramik yang dapat digunakan pada *solid oxide fuel cell* (SOFC) (Droushiotis dkk., 2009), pemisahan oksigen dari campuran gas dan pengolahan gas alam (Meng dkk., 2015). Indonesia termasuk ke dalam sepuluh negara penghasil terbesar gas alam di dunia. Berdasarkan data dari *British Petroleum Statistical Review of Energy*, pada tahun 2016 Indonesia berada di posisi ke 6 sebagai produsen gas alam dikawasan Asia Pasifik (BP, 2016). Gas alam mengandung metana dengan jumlah yang paling besar, yaitu mencapai 90%, sedangkan sisanya yaitu nitrogen, karbon dioksida dan H<sub>2</sub>S serta hidrokarbon C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub> dan C<sub>5</sub> dalam jumlah yang sedikit. Oleh karena kandungan terbesar yaitu metana dan dengan massa molekul relatif paling kecil serta titik didih sangat kecil cukup beresiko dalam penyimpanan dan pendistribusian gas alam tersebut, karena gas alam mudah terbakar pada suhu normal, sehingga didasarkan pada sifat gas alam tersebut menyebabkan biaya operasional dan distribusi menjadi sangat tinggi. Oleh karena itu, banyak penelitian dikembangkan untuk mengubah gas alam menjadi produk lain yang lebih bernilai, murah, dan mudah dalam distribusinya.

Salah satu cara pengolahan gas alam yaitu dengan cara oksidasi parsial dengan mengubah metana menjadi syngas. Reaksi oksidasi parsial metana tersebut dapat dilakukan dengan bantuan material yang mampu menghantarkan oksigen dengan teknologi membran, sehingga oksigen akan bereaksi dengan metana dan menghasilkan syngas (Liao dkk., 2014). Membran ini digunakan untuk mengontrol jumlah oksigen yang mengalami kontak dengan metana, jika tidak dikontrol maka akan berpotensi terjadinya reaksi oksidasi sempurna yang tidak menghasilkan syngas. Reaksi oksidasi parsial merupakan reaksi eksotermik dan reaksi oksidasi sempurna lebih eksotermik dibanding pembentukan syngas. Adapun entalpi reaksi

pembentukan syngas yaitu  $\Delta H_{298}^{\circ} = -36 \text{ kJ/mol}$  dan  $\Delta H_{298}^{\circ} = -803 \text{ kJ/mol}$  untuk reaksi oksidasi sempurna (Ruiz-trejo dkk., 2015).

Didasarkan literatur yang ada, membran yang berpotensi digunakan untuk reaksi oksidasi parsial metana adalah membran berbasis material perovskit, dimana membran perovskit dapat menghantarkan oksigen dari satu sisi ke sisi lain dari permukaan membran (Takahashi dkk., 2010). Transfer oksigen pada membran perovskit tersebut, terjadi akibat adanya kekosongan oksigen pada struktur kristal perovskit sehingga material ini merupakan material yang sangat selektif dalam menghantarkan oksigen (Tan dkk., 2012).

Membran perovskit harus memiliki sifat-sifat fisik yang kuat agar tidak mudah rusak dan sifat kimia yang sesuai untuk reaksi yang dimaksud. Syarat membran yang sesuai untuk reaksi oksidasi parsial metana yaitu memiliki stabilitas mekanik yang tinggi, tahan pada suhu tinggi, tidak mudah rusak akibat reaksi kimia, dan memiliki fluks oksigen yang tinggi (Athayde dkk., 2016). Hal-hal yang mempengaruhi syarat-syarat di atas antara lain yaitu ketebalan dan morfologi dari membran perovskit (Tan dan Liu, 2011).

Berdasarkan penelitian sebelumnya, banyak peneliti mengembangkan membran datar asimetris, pada membran ini terdapat bagian yang berpori dan lapisan tipis yang rapat, sehingga pengembangan membran datar asimetris dibuat dengan mengontrol morfologi membran yang terbentuk (Tan dan Liu, 2011). Membran datar asimetris dapat dibuat dengan berbagai metode seperti *dry pressing*, *dip coating* dan inversi fasa. Namun metode fabrikasi membran datar asimetris yang banyak dilakukan dengan metode inversi fasa. Keuntungan dari metode ini yaitu struktur pori dari membran dapat didesain dengan penambahan aditif dan interaksi antara pelarut dengan nonpelarut, sehingga membran yang dihasilkan memiliki lapisan berpori yang lebih tebal dibandingkan dengan lapisan rapat (Chakrabarty dkk., 2008). Beberapa faktor yang berpengaruh dalam metode inversi fasa yaitu tipe polimer, pelarut, nonpelarut, aditif, viskositas, suhu sintering, dan distribusi ukuran partikel dari oksida perovskit (Setyaningsih dkk., 2016).

Banyak peneliti mempelajari faktor-faktor yang berpengaruh terhadap pembentukan morfologi membran datar asimetris. Setyaningsih dkk. (2016) membuat membran datar asimetris berbasis  $\text{CaTiO}_3$  dan dihasilkan membran yang memiliki pori *finger like* dan *sponge like*, serta lapisan berpori lebih tebal dibandingkan lapisan yang rapat. Saljoughi dkk. (2010) mempelajari pengaruh konsentrasi aditif polietilen glikol (PEG) terhadap morfologi membran selulosa asetat (CA). Tan dkk. (2011) mengembangkan membran keramik berbasis  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ . Tan dkk (2011). mempelajari pengaruh nonpelarut terhadap morfologi membran yang terbentuk dengan aditif berupa polivinilpirolidon dan air. Kombinasi kedua aditif ini menghasilkan membran dengan pori tertentu tergantung dari nonpelarut yang dikontakkan ketika mencetak membran.

Utomo dkk. (2014) menggunakan PEG dengan berat molekul 6000 sebagai aditif. PEG dengan berbagai berat molekul juga digunakan sebagai aditif, semakin besar berat molekul dari PEG, semakin besar ukuran *macrovoid*/pori yang dihasilkan (Wongchitphimon dkk., 2011). Pada penelitian ini digunakan PEG 8000 dengan harapan menghasilkan membran dengan ukuran pori yang lebih besar. Selain itu, untuk mengontrol terbentuknya lapisan rapat yang tipis PEG 8000 dikombinasikan dengan air sebagai aditif. Kombinasi antara PEG 8000 dan  $\text{H}_2\text{O}$  belum banyak dilaporkan sebagai aditif, sehingga menarik untuk dipelajari lebih lanjut mengenai pengaruh kombinasi PEG dan  $\text{H}_2\text{O}$  serta interaksinya dengan nonpelarut.

## 1.2 Rumusan Masalah

Membran berbasis perovskit dapat digunakan sebagai membran penghantar oksigen pada reaksi oksidasi parsial metana, membran yang ideal dalam reaksi tersebut merupakan membran asimetris, dimana terdapat lapisan rapat dan lapisan berpori. Lapisan berpori yang diinginkan pada membran asimetris memiliki struktur pori *finger like*. Pembentukan pori pada membran dipengaruhi oleh aditif (Saljoughi dkk., 2010). PEG dilaporkan sebagai aditif yang potensial dalam pembentukan pori (Saljoughi dkk., 2010), penggunaan PEG menghasilkan lapisan rapat yang tipis sebesar  $21 \mu\text{m}$ . Meskipun diperoleh lapisan rapat setebal  $21 \mu\text{m}$

yang termasuk dalam range ideal, tetapi membran tersebut memiliki kekuatan mekanik yang rendah. Tebal lapisan rapat yang ideal pada membran asimetris yaitu 20-65  $\mu\text{m}$  (Attahyde dkk., 2016). Oleh karena itu, PEG perlu dikombinasikan dengan senyawa lain seperti  $\text{H}_2\text{O}$  untuk meningkatkan ketebalan lapisan rapat pada membran. Menurut Mohamed dkk (2016), semakin banyak penambahan  $\text{H}_2\text{O}$  akan menghasilkan lapisan rapat yang semakin tebal. Sehingga pada penelitian ini akan dipelajari pengaruh kombinasi PEG dan  $\text{H}_2\text{O}$  terhadap pembentukan pori dan ketebalan lapisan rapat pada membran asimetris berbasis perovskit.

### **1.3 Tujuan**

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh aditif campuran polietilen glikol (PEG) dan  $\text{H}_2\text{O}$  terhadap morfologi baik lapisan berpori maupun lapisan rapat yang terbentuk pada membran datar asimetris  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3-\delta}$ .

### **1.4 Manfaat**

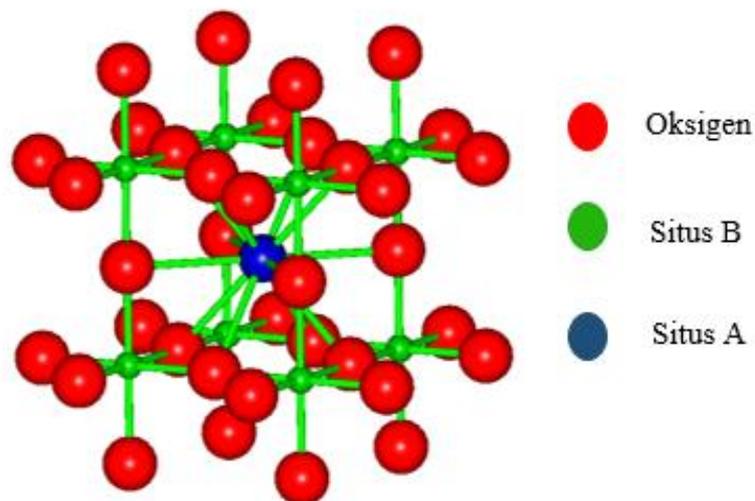
Hasil yang diperoleh dari penelitian ini diharapkan dapat memberikan kontribusi dalam pengembangan membran asimetris berbasis perovskit baik dengan modul datar atau *hollow fiber* untuk pemisahan gas, *solid oxide fuel cell* (SOFC), maupun oksidasi parsial metana.

## BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

### 2.1 Oksida Perovskit

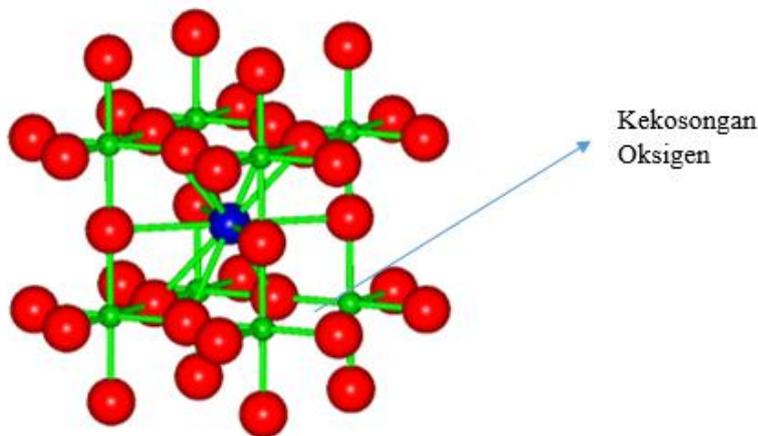
$\text{CaTiO}_3$  merupakan oksida perovskit pertama yang ditemukan di kawasan pegunungan Ural, oksida ini ditemukan pertama kali oleh Count Lev Aleksevich Von Perovski. Penamaan perovskit diambil dari nama belakang penemu pertama oksida ini. Namun, pada tahun 1893 perovskit diperkenalkan secara luas oleh Gustav Rose.

Oksida perovskit memiliki rumus molekul  $\text{ABO}_3$  dan memiliki struktur kristal berupa kubik. Situs A merupakan kation logam dari golongan alkali dan alkali tanah, sedangkan B merupakan kation logam golongan transisi. Kation A memiliki ukuran yang besar sehingga menempati ruang yang lebih besar jika dibandingkan dengan kation B. Kation A berikatan dengan 12 oksigen atau memiliki bilangan koordinasi 12, sedangkan kation B memiliki bilangan koordinasi 6 (Athayde dkk., 2016). Struktur umum perovskit ditunjukkan oleh Gambar 2.1.



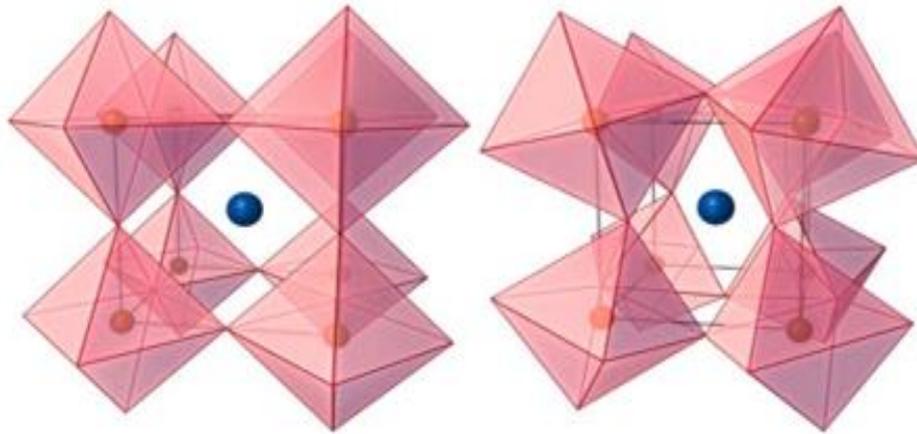
Gambar 2.1 Struktur perovskit

Oksida perovskit merupakan salah satu material *Mix Ionic Electronic Conductivity* (MIEC), material jenis ini mampu mengantarkan ion dan elektron. Namun, struktur ideal perovskit tidak menunjukkan sifat pengantar ionik, substitusi parsial dari situs A dan situs B perovskit dapat menyebabkan Kekosongan oksigen sehingga dapat mengantarkan ion oksigen (Athayde dkk., 2016). Kekosongan oksigen atau perpindahan oksigen dari satu situs ke situs tetangganya akibat kekosongan oksigen pada beberapa situs dalam struktur perovskit (Sunarso dkk., 2008). Jumlah muatan antara situs A dan B adalah +6, substitusi parsial pada situs A dan B dapat menghasilkan jumlah muatan antara situs A dan B kurang dari +6, maka kekurangan muatan ini dapat ditunjukkan sebagai kekosongan oksigen dari hasil substitusi parsial kation A dan B pada perovskit. Kekosongan oksigen pada struktur perovskit ditunjukkan pada Gambar 2.2.



Gambar 2.2 Struktur perovskit yang memiliki kekosongan oksigen

Struktur perovskit dapat terdistorsi dari kubik menjadi triklin, tetragonal, rombohedral, monoklin atau ortorombik akibat *vacancy* oksigen, Gambar 2.3 menunjukkan perubahan yang terjadi dari kubik menjadi ortorombik Persamaan Goldschmidt (2.1) dapat digunakan untuk mengetahui struktur perovskit. Jika nilai faktor toleransi ( $t$ ) berada direntang 0,8 hingga 1, maka struktur tersebut masih merupakan perovskit (Sunarso dkk., 2008).



(a) Kubus

(b) Ortorombik

Gambar 2.3 Distorsi kubus menjadi ortorombik

$$t = \frac{(r_A + r_O)}{\sqrt{2}(r_B + r_O)} \quad (2.1)$$

Dimana  $r_A$  adalah jari-jari kation A,  $r_B$  merupakan jari-jari kation B dan  $r_O$  adalah jari-jari oksigen. Perovskit mempunyai kapasitas pada kisi kristalnya untuk ditempati oleh kation-kation yang memiliki valensi satu, dua, tiga, empat, dan lima jika ukuran ionnya berada pada rentang 0,45 hingga 0,75 atau 1 hingga 1,4 a.u (unit atom) (Sunarso dkk., 2008)

LSCF merupakan perovskit hasil modifikasi atau substitusi parsial dari  $\text{LaFeO}_3$ , LSCF memiliki fluks oksigen yang lebih baik dibandingkan dengan  $\text{LaFeO}_3$ . Hal ini dikarenakan jumlah bilangan oksidasi antara  $\text{La}^{3+}$  dan  $\text{Fe}^{3+}$  bernilai +6 atau berada pada struktur perovskit yang ideal sehingga tidak terdapat kekosongan oksigen pada kisi perovskit. Hal tersebut menyebabkan fluks oksigen dari  $\text{LaFeO}_3$  lebih rendah dibandingkan dengan LSCF.

Selain meningkatkan fluks oksigen, substitusi parsial pada struktur perovskit berpengaruh terhadap stabilitas mekanik dari produk substitusi oksida perovskit. Selain komposisi unsur penyusun perovskit, suhu operasi juga

berpengaruh terhadap fluks oksigen dari membran perovskit. Semakin tinggi suhu operasi menyebabkan fluks oksigen semakin meningkat (Kathiraser dkk., 2013).

Tabel 2.1 Fluks oksigen dari membran perovskit (Sunarso dkk., 2008)

<b>Perovskit</b>	<b>Suhu (°C)</b>	<b>Fluks Oksigen (mol.s<sup>-1</sup>/cm<sup>2</sup>)</b>	<b>Modul Membran</b>
La <sub>0,6</sub> Sr <sub>0,4</sub> FeO <sub>3</sub>	1000	2,612 x 10 <sup>-7</sup>	Datar
La <sub>0,7</sub> Sr <sub>0,3</sub> FeO <sub>3</sub>	1000	1,614 x 10 <sup>-7</sup>	Datar
La <sub>0,8</sub> Sr <sub>0,2</sub> FeO <sub>3</sub>	1000	1,000 x 10 <sup>-7</sup>	Datar
La <sub>0,9</sub> Sr <sub>0,1</sub> FeO <sub>3</sub>	1000	2,153 x 10 <sup>-8</sup>	Datar
La <sub>0,6</sub> Sr <sub>0,4</sub> CoO <sub>3</sub>	870	3,77 x 10 <sup>-7</sup>	Datar
La <sub>0,6</sub> Sr <sub>0,4</sub> Co <sub>0,8</sub> Fe <sub>0,2</sub> O <sub>3</sub>	860	4,591 x 10 <sup>-7</sup>	Datar
La <sub>0,6</sub> Sr <sub>0,4</sub> Co <sub>0,4</sub> Fe <sub>0,6</sub> O <sub>3</sub>	1000	2,53 x 10 <sup>-8</sup>	Datar

## 2.2 Sintesis Oksida Perovskit

Sintesis perovskit telah banyak dilakukan dengan berbagai metode, antara lain : sol-gel (Belkhiria dkk., 2017), ko-presipitasi , dan *solid state*. Ketiga metode sintesis tersebut memiliki kelebihan dan kekurangan masing-masing. Metode sol-gel dan ko-presipitasi tidak memerlukan suhu yang tinggi untuk pembentukan oksida perovskit (Fabian dkk., 2015). Namun produk yang dihasilkan lebih sedikit dibandingkan menggunakan metode *solid state* dan pada produk sintesis terbentuk fasa-fasa dari material awal penyusun oksida perovskit. Sedangkan metode *solid state* merupakan metode konvensional untuk memproduksi keramik. Keuntungan metode *solid state* yaitu biaya operasi yang rendah dan sintesisnya mudah dengan oksida-oksida sebagai material awal (Athayde dkk., 2016). Produk yang dihasilkan pun hanya terbentuk satu fasa oksida perovskit. Tetapi, metode *solid state* memerlukan suhu yang tinggi dan menghasilkan partikel yang besar. Selain itu, metode ini menghasilkan produk yang tidak sepenuhnya homogen (Côte dkk., 2013). Salah satu metode yang menjanjikan selain ketiga metode tersebut yaitu *mechanochemical*.

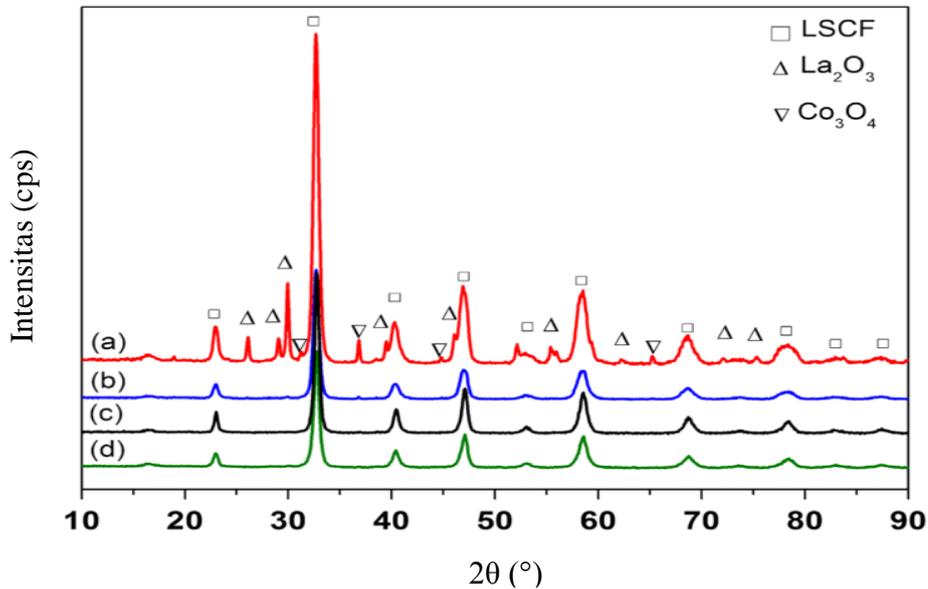
*Mechanochemical* adalah salah satu metode untuk mensintesis keramik, metode ini menggunakan *ball mill* dengan kecepatan putar tertentu yang sesuai dengan keramik yang diinginkan. Keuntungan dari metode ini yaitu produk yang dihasilkan memiliki ukuran partikel yang kecil, dan luas permukaan yang besar (Zhang dkk., 2000). Metode ini dibagi atas dua, yaitu pembuatan keramik secara basah atau kering. Cara basah menggunakan dispersan seperti alkohol, sedangkan cara kering tidak menggunakan dispersan atau hanya bola zirkonia saja yang digunakan untuk menggerus material dengan kecepatan tertentu.

Zhang dkk. (2000) menggunakan metode *mechanochemical* untuk mensintesis  $\text{LaMnO}_3$ , pada sintesis tersebut Zhang dkk. menggunakan *ball mill* dengan kecepatan 700 rpm pada suhu kamar, metode tersebut menghasilkan produk yang memiliki luas permukaan yang besar. Reaktivitas dari material awal akan meningkat signifikan setelah *mechanochemical*, hal ini akan sangat menguntungkan karena dapat menurunkan suhu pada saat kalsinasi (Côte dkk., 2013).

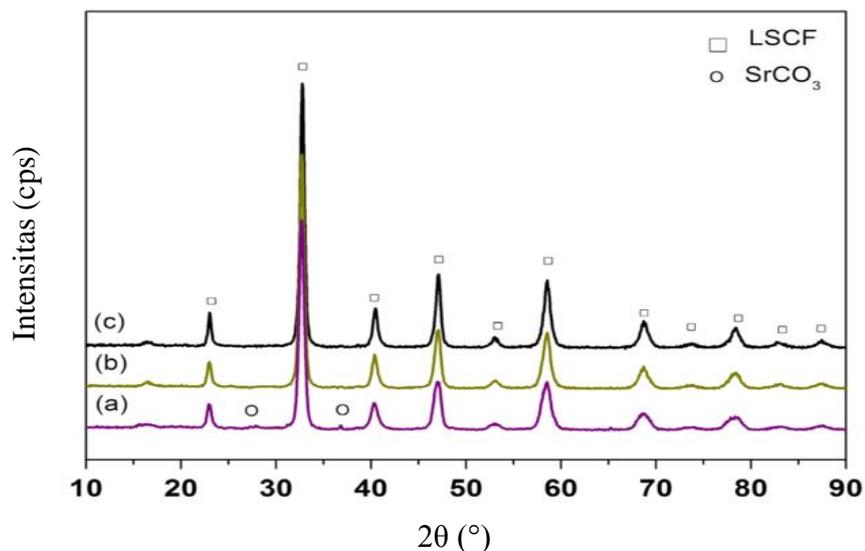
Côte dkk. (2013) melakukan penelitian tentang perbandingan bola zirkonia dan sampel, kecepatan penggerusan dan suhu kalsinasi pada sintesis  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$ . Apabila menggunakan perbandingan bola zirkonia dan sampel = 6:1, maka terbentuk fasa perovskit dan juga muncul fasa-fasa dari material awal ( $\text{SrCO}_3$  dan  $\text{La}_2\text{O}_3$ ), sedangkan jika perbandingan bola zirkonia dan sampel = 8:1, maka terbentuk satu fasa perovskit. Parameter selanjutnya mengenai kecepatan penggerusan, jika kecepatan penggerusan rendah (kurang dari 300 rpm), maka pada difraktogram  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$  muncul fasa dari perkursor oksida yang digunakan. Hal ini mengindikasikan bahwa pada kecepatan 300 rpm sebagian perkursor tidak bereaksi dengan perkursor-perkursor oksida lainnya. Difraktogram dari penelitian Côte dkk. ditunjukkan oleh Gambar 2.4 dan Gambar 2.5.

Durasi penggerusan juga memberikan pengaruh terhadap fasa yang terbentuk, semakin lama waktu penggerusan maka akan terbentuk satu fasa  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$ . Difraktogram diatas menunjukkan bahwa pada waktu penggerusan 2 jam, muncul puncak perkursor  $\text{SrCO}_3$  dengan intensitas yang sangat

kecil. Namun, jika waktu penggerusan diperpanjang menjadi 4 dan 6 jam, maka akan terbentuk satu fasa  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$  (Côte dkk., 2013). Perbedaan waktu penggerusan juga menghasilkan ukuran kristal yang berbeda yang ditunjukkan oleh tabel 2.2.



Gambar 2.4 Difraktogram  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$  dengan rasio bola : sampel = 8:1 (A) 6 jam penggerusan dengan kecepatan (a) 300, (b) 400, (c) 500, dan (d) 600 rpm (Côte dkk., 2013)



Gambar 2.5 Difraktogram  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{O}_3$  dengan kecepatan 500 rpm dan durasi penggerusan (a) 2, (b) 4, dan (c) 6 jam (Côte dkk., 2013)

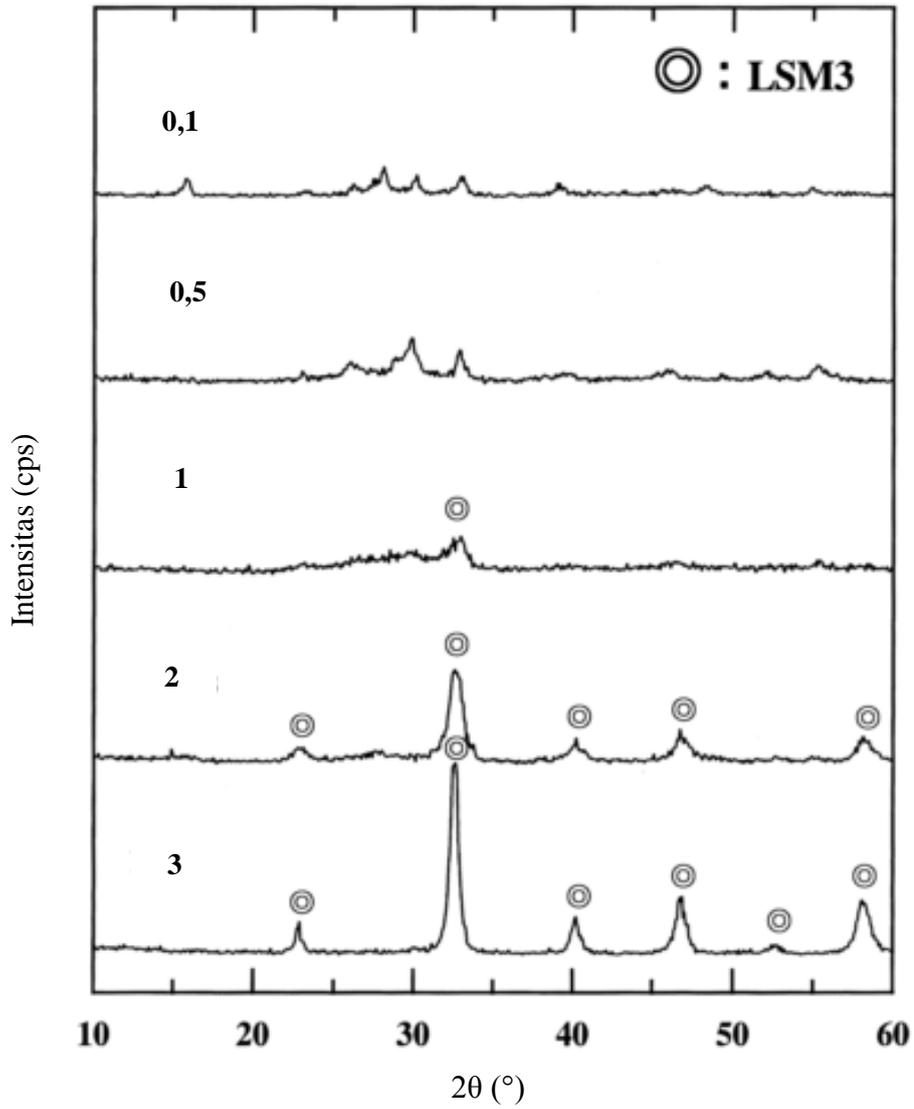
Tabel 2.2 Rata-rata ukuran kristal ( $D_{XRD}$ ), dan parameter kisi LSCF yang disintesis dengan rasio bola : sampel = 8:1, 500 rpm

Waktu Penggerusan (jam)	$D_{XRD}$ (nm)	Parameter kisi ( $\text{\AA}$ )
2	12,4	a = 5,4705 c = 13,3122
4	13,7	a = 5,4697 c = 13,2969
6	15,5	a = 5,4592 c = 13,3252

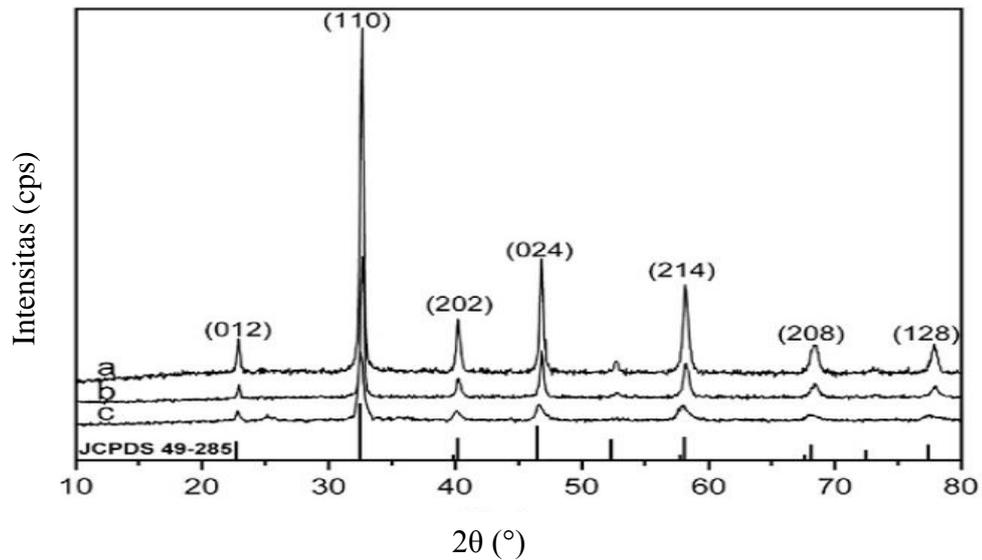
Selain LSCF,  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  juga dilaporkan sebagai material yang memiliki kemampuan menghantarkan oksigen yang baik.  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  merupakan salah satu modifikasi substitusi parsial dari  $\text{LaMnO}_3$ . Perovskit jenis ini dilaporkan memiliki sifat magnet dan aktivitas katalitik yang baik (Ishihara, 2009). Zhang dkk. (2000) melakukan penelitian tentang pengaruh waktu penggerusan untuk sintesis  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  dengan metode *mechanochemical*. Hasil penelitian Zhang dkk. menunjukkan bahwa semakin lama waktu penggerusan maka intensitas puncak dari  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  semakin tinggi dan lebar puncak semakin kecil. Hal ini menunjukkan bahwa  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  terbentuk dengan kekristalan yang semakin tinggi. Waktu penggerusan yang semakin panjang juga menghasilkan partikel yang memiliki ukuran yang kecil dan luas permukaan yang besar (2 hingga 3 jam) dengan nilai  $9-10 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ . Difraktogram  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  dengan variasi waktu penggerusan ditunjukkan oleh Gambar 2.6.

Salah satu cara dalam sintesis perovskit adalah dengan kombinasi metode *mechanochemical* dan *solid state*. Grabowska dkk. (2010) melakukan sintesis  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  dengan kombinasi kedua metode tersebut. Perovskit yang disintesis kemudian dibandingkan dengan hasil sintesis yang menggunakan metode sol - gel dan  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  komersil. Puncak - puncak dari oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  yang disintesis dengan kombinasi metode *mechanochemical* dan *solid state* memiliki puncak-puncak yang sama dengan  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$

komersil (Grabowska dan Trawczy, 2010). Gambar 2.7 menunjukkan difraktogram dari  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  hasil penelitian Grabowska dkk..



Gambar 2.6 Difraktogram  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  dengan berbagai waktu penggerusan (jam) (Zhang dkk., 2000)

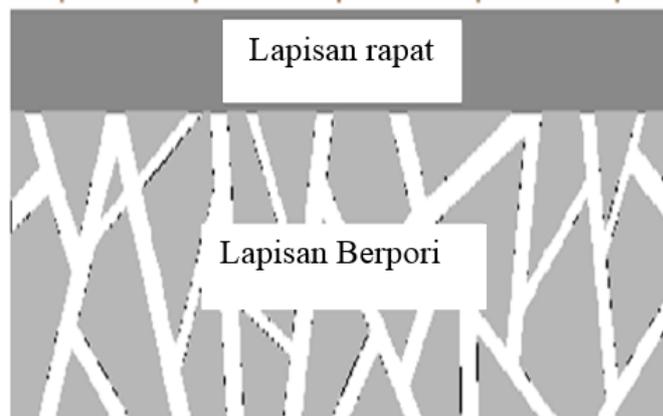


Gambar 2.7 Difraktogram  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  yang disintesis dengan metode : (a) komersil ; (b) sol-gel ; dan (c) kombinasi *mechanochemical* dan *solid state* (Grabowska dan Trawczy, 2010)

### 2.3 Membran

Membran merupakan material yang berfungsi untuk membatasi dua fasa. Berdasarkan modulnya, membran dapat dibagi menjadi membran datar, *spiral wound*, tubular, *capillary* dan *hollow fiber*. Berdasarkan material penyusunnya, membran terbagi atas membran polimer, membran organik-anorganik dan membran keramik. Sedangkan berdasarkan morfologinya membran dibagi menjadi dua yaitu membran simetris dan membran asimetris (Mulder, 1996).

Membran simetris merupakan membran yang memiliki ukuran dan kerapatan pori pada semua bagian membran, sedangkan membran asimetris merupakan membran yang memiliki lapisan rapat yang didukung oleh lapisan pendukung berpori (Mulder, 1996). Pada umumnya terdapat lapisan rapat, lapisan *intermediet* dan lapisan berpori pada membran asimetris. Membran asimetris lebih banyak digunakan untuk pemisahan gas dibandingkan membran simetris, karena permeasi gas pada membran asimetris lebih tinggi (Yang dkk., 2013). Membran datar asimetris yang baik memiliki lapisan rapat yang ketebalannya berkisar antara 20 – 65  $\mu\text{m}$  (Athayde dkk., 2016).

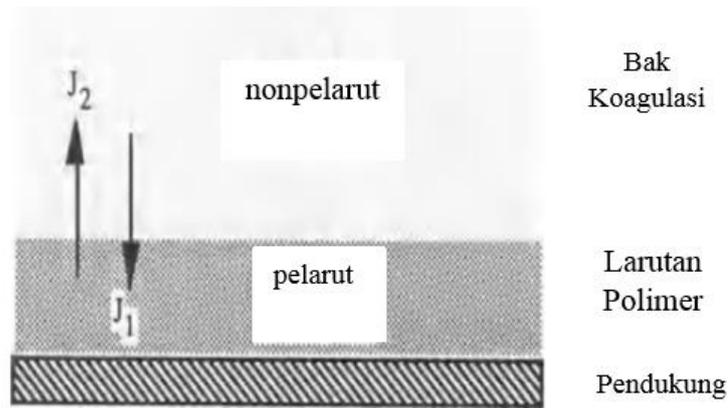


Gambar 2.8 Membran datar asimetris (Mulder, 1996)

Membran datar asimetris secara umum difabrikasi dengan metode inversi fasa – endap rendam (*immersion precipitation*). Metode ini sangat mudah untuk dilakukan dan memiliki banyak keuntungan dalam mendesain struktur pori yang diinginkan dari membran. Pengendapan membran dilakukan pada bak koagulasi dan terdapat nonpelarut pada bak koagulasi yang berfungsi sebagai koagulan (Mulder, 1996).

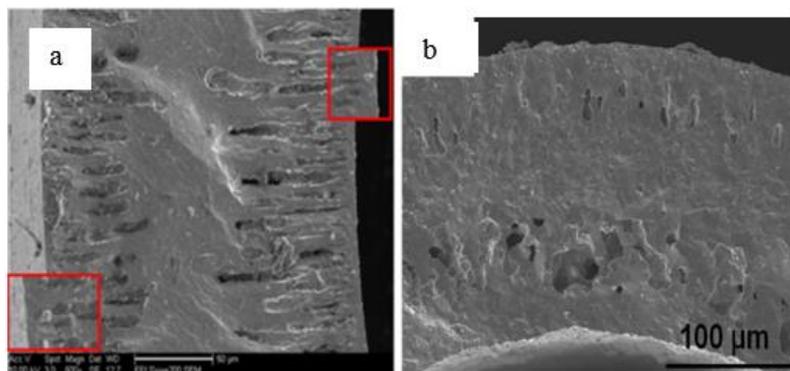
#### 2.4 Fabrikasi Membran Datar Asimetris dengan Metode Inversi Fasa

Inversi fasa ialah proses transformasi polimer dari fasa cair menjadi fasa padat dengan kontrol tertentu. Perubahan fasa ini diinisiasi oleh transisi fasa cair penyusun membran dari satu fasa cairan menjadi dua fasa cairan (*liquid-liquid demixing*). Pada tahap tertentu, salah satu cairan mengalami pembekuan sehingga mengalami pepadatan dan terbentuk fasa padat. Morfologi membran dapat diatur dengan penambahan zat aditif tertentu. Metode inversi fasa biasa dikombinasikan dengan pengendapan terendam, larutan yang berisi polimer, pelarut, *filler*, aditif dimasukkan ke dalam cetakan membran lalu direndam dalam bak koagulan yang berisi nonpelarut. Presipitasi terjadi akibat adanya pertukaran antara pelarut dan nonpelarut, pada proses ini aditif akan mengalami pertukaran dengan nonpelarut sehingga akan meninggalkan pori pada morfologi membran (Mulder, 1996).



Gambar 2.9 Mekanisme pertukaran pelarut dan nonpelarut

Kecepatan pertukaran (difusi) antara pelarut dan nonpelarut menyebabkan morfologi yang berbeda, semakin cepat pertukaran pelarut dan nonpelarut maka membran yang dihasilkan semakin berpori. Tetapi, semakin lambat pertukaran antara pelarut dan nonpelarut maka membran yang dihasilkan semakin rapat (Singh dkk., 2013).

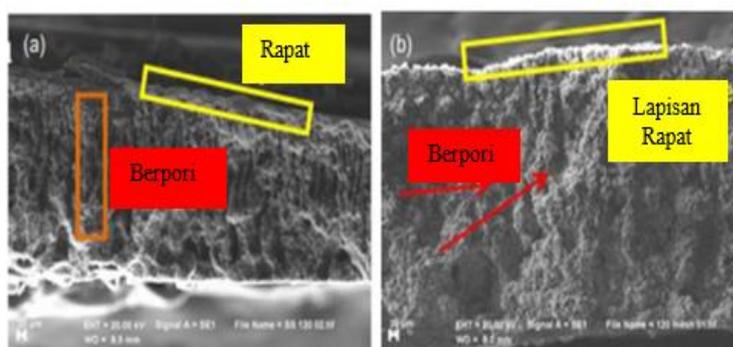


Gambar 2.10 Foto SEM membran perovskit dengan struktur pori : (a) *finger like* dan (b) *sponge like*

Selain kecepatan pertukaran, penambahan aditif pada larutan polimer juga mempengaruhi pembentukan struktur pori membran. Aditif yang berbeda dapat menghasilkan struktur pori *sponge like* atau *finger like*. Hal ini bergantung dari interaksi antara nonpelarut dan aditif yang digunakan.

Jika laju difusi antara pelarut (J2) dan nonpelarut (J1) berlangsung seimbang, maka struktur pori yang terbentuk pada membran yaitu *sponge like*, sedangkan jika laju difusi nonpelarut lebih cepat dibandingkan dengan pelarut, maka struktur pori membran yang dihasilkan adalah *finger like*.

Setyaningsih dkk. (2016) membuat membran datar asimetris berbasis  $\text{CaTiO}_3$  dengan metode inversi fasa, membran yang dihasilkan memiliki lapisan yang berpori dan lapisan yang rapat. Polimer yang digunakan yaitu PEI dengan pelarut NMP dan nonpelarut yang digunakan adalah air. Salah satu keuntungan metode inversi fasa – endap rendam yaitu kemudahan dalam pembuatan membran asimetris, lapisan rapat dan lapisan berpori sangat mudah dibuat dengan metode ini (Setyaningsih dkk., 2016).



Gambar 2.11 Penampang lintang membran datar asimetris  $\text{CaTiO}_3$  (Setyaningsih dkk., 2016)

Gambar 2.11 menunjukkan bahwa lapisan yang rapat memiliki ketebalan yang lebih rendah dibandingkan dengan lapisan yang berpori. Lapisan yang rapat merupakan bagian dari membran yang tidak mengalami kontak dengan nonpelarut sehingga tidak terjadi pertukaran antara pelarut dan nonpelarut pada bagian tersebut.

Morfologi membran asimetris berpengaruh terhadap sifat fisik dan kinerja membran. Tan dkk. (2011) melakukan penelitian tentang kekuatan mekanik membran *hollow fiber* berbasis  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ , morfologi membran yang dihasilkan merupakan membran asimetris. Hasil penelitian menunjukkan bahwa

semakin tebal lapisan berpori maka kekuatan mekanik membran semakin rendah, sebaliknya semakin tebal lapisan yang rapat maka semakin tinggi kekuatan mekanik dari membran tersebut.

## **2.5 Faktor-Faktor yang Mempengaruhi Morfologi Membran Datar Asimetris**

Metode inversi fasa – endap rendam merupakan metode yang sangat mudah digunakan untuk membuat membran yang memiliki lapisan rapat dan lapisan berpori. Pada proses fabrikasi membran, ada beberapa hal yang berpengaruh terhadap morfologi membran yang terbentuk, yaitu (Mulder, 1996):

1. *Binder* / polimer
2. Pelarut dan nonpelarut
3. Aditif

### **2.5.1 Pengaruh *Binder* Polimer**

Pada metode inversi fasa, polimer memainkan peranan penting. Polimer berfungsi sebagai pengikat partikel untuk pembentuk membran. Selain itu, pemilihan polimer harus diperhatikan khususnya untuk membran berpori dan membran rapat. Pada membran berpori, performa membran bergantung pada ukuran pori yang terbentuk. Selain itu, stabilitas mekanik dan stabilitas termal sangat bergantung pada jenis polimer yang digunakan. Sedangkan pada membran rapat, pemilihan jenis polimer menentukan kereaktifan terhadap zat-zat atau senyawa tertentu. Kinerja membran rapat tergantung pada sifat intrinsik penyusun membran.

Pada fabrikasi membran keramik, polimer harus dapat larut dalam pelarut yang digunakan, polimer yang mengikat antar partikel dari keramik akan menguap/terdegradasi ketika membran disinter pada suhu tinggi. Polimer yang terdegradasi oleh termal akan meninggalkan pori, pembentukan pori ini juga dipengaruhi interaksi polimer dengan pelarut dan nonpelarut. Secara umum, banyak peneliti menggunakan PESf sebagai polimer pada fabrikasi membran keramik. PESf dapat larut dengan berbagai pelarut seperti : N,N-Dimetilformamida (DMF),

N-metil-2-pirrolidon (NMP), N,N-dimetilasetamida (DMAc), TEP dan dimetilsulfoksida (DMSO) (Paul dkk., 2016). Tetapi, peneliti lain juga menggunakan beberapa polimer lain seperti yang ditunjukkan oleh Tabel 2.3.

Tabel 2.3 Jenis-jenis polimer yang digunakan pada fabrikasi membran asimetris

<b>Polimer</b>	<b>Pelarut</b>	<b>Nonpelarut</b>	<b>Morfologi Membran</b>	<b>Referensi</b>
PESf	NMP	Air	Berpori	(Zydorczak dkk., 2009)
PEI	NMP	Air	Berpori	(Setyaningsih dkk., 2016)
PES	NMP	Air	Berpori	(Xu dan Qusay, 2003)
PSU	NMP	Air	Berpori	(Song dkk., 2016)
PI	NMP	Air	Berpori	(Ong dan Chung, 2012)
P84	NMP	Air	Berpori	(Lua dan Shen, 2013)

### 2.5.2 Pengaruh Pelarut dan Nonpelarut

Pada metode inversi fasa, pelarut dan nonpelarut berperan dalam pembentukan morfologi membran. Perbedaan laju difusi antara pelarut dan non pelarut menghasilkan struktur pori yang berbeda. Syarat pelarut yang dapat digunakan pada metode ini, yaitu :

1. Pelarut harus dapat saling campur dengan nonpelarut yang digunakan.
2. Pelarut harus dapat melarutkan polimer dengan konsentrasi tinggi.
3. Pelarut harus bersifat cukup volatil agar mudah menguap ketika membran disinter.

Selain pelarut, hal lain yang harus diperhatikan yaitu nonpelarut. Nonpelarut dapat terdiri dari satu senyawa atau campuran. Secara umum, nonpelarut yang banyak digunakan yaitu air (Othman dkk., 2013). Tabel 2.4 menunjukkan pasangan pelarut dan nonpelarut terhadap morfologi membran yang terbentuk.

Tan dkk. (2012) membuat membran berbasis perovskit menggunakan polimer PESf, NMP sebagai pelarut, air sebagai nonpelarut, membran yang dihasilkan oleh Tan dkk membentuk struktur pori *finger like*.

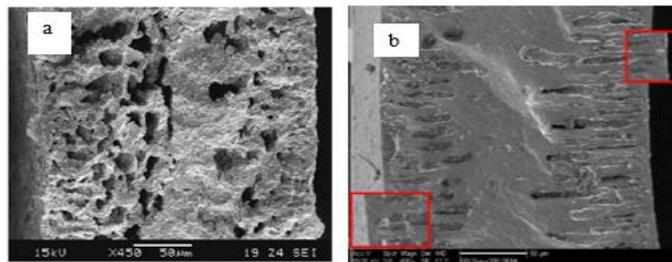
Tabel 2.4 Pasangan pelarut dan nonpelarut pada fabrikasi membran keramik

<b>Pelarut</b>	<b>Nonpelarut</b>	<b>Morfologi Membran</b>	<b>Referensi</b>
DMSO	Air	Berpori	(Othman dkk., 2013)
DMF	Air	Berpori	(Arthanareeswaran dkk., 2009)
DMAc	Air	Berpori	(Chakrabarty dkk., 2008)
NMP	Air	Berpori	(Pan dkk., 2013)
NMP	Air+NMP	Berpori	(Tan dan Liu, 2011)
NMP	Etanol+NMP	Berpori	(Tan dan Liu, 2011)
NMP	Etanol	Berpori	(Tan dan Liu, 2011)
DMAc	n-butanol	Rapat	(Mulder, 1996)
DMAc	n-propanol	Rapat	
DMAc	i-propanol	Rapat	
Trikloroetilen	Metanol	Rapat	
Trikloroetilen	Etanol	Rapat	
Trikloroetilen	Propanol	Rapat	
Kloroform	Metanol	Rapat	
Kloroform	Etanol	Rapat	
Kloroform	Propanol	Rapat	
Diklorometana	Metanol	Rapat	
Diklorometana	Etanol	Rapat	
Diklorometana	Propanol	Rapat	

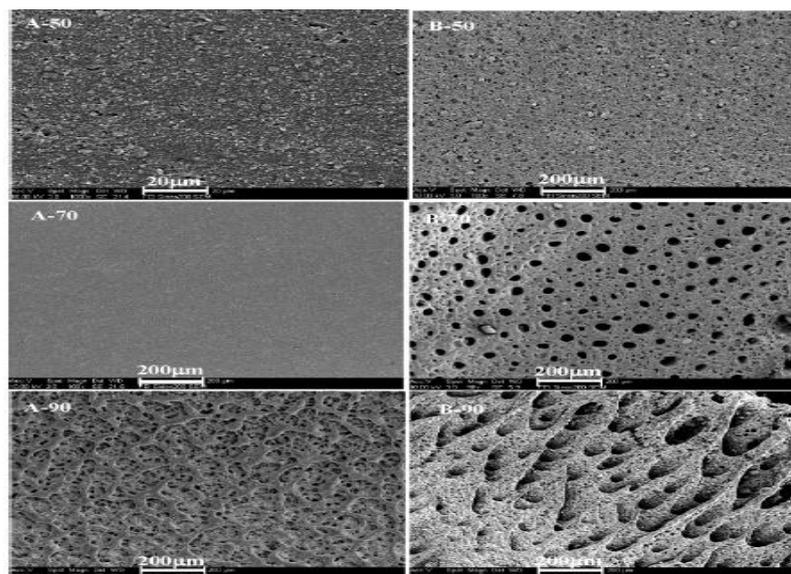
Pada tahun berikutnya, Othman dkk. (2013) melakukan fabrikasi membran keramik dengan polimer dan nonpelarut yang sama. Tetapi, pelarut yang digunakan Othman dkk adalah DMSO. Pelarut DMSO juga menghasilkan struktur pori *finger like*. Gambar 2.12 menunjukkan penampang lintang membran asimetris yang difabrikasi dengan dua pelarut yang berbeda.

Tan dkk. (2011) melakukan penelitian tentang pengaruh nonpelarut terhadap morfologi membran. Nonpelarut yang digunakan pada penelitian Tan dkk yaitu campuran antara air dan NMP, serta campuran antara etanol dan NMP. Sedangkan pelarut yang digunakan yaitu NMP. Ketika jumlah NMP pada nonpelarut melebihi 50%, maka lapisan yang memiliki struktur pori *finger like*

semakin bertambah, sedangkan lapisan rapat dan lapisan yang memiliki struktur pori *sponge like* berkurang. Penggunaan campuran air+NMP dan etanol+NMP menghasilkan permukaan membran yang kasar. Penggunaan NMP ketika melebihi 50% pada nonpelarut membuat membran yang dihasilkan semakin kasar. Campuran etanol+NMP menghasilkan permukaan yang lebih kasar dibandingkan air+NMP. Hal ini menunjukkan pori yang terbentuk lebih banyak dan ukuran yang lebih besar dengan penggunaan etanol+NMP. Gambar 2.13 menunjukkan permukaan membran yang difabrikasi dengan berbagai nonpelarut.



Gambar 2.12 Membran keramik yang difabrikasi dengan pelarut : (a) DMSO dan (b) NMP



Gambar 2.13 Morfologi membran  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  dengan nonpelarut : 50% Air: 50% NMP (A-50) ; 30% Air:70% NMP (A-70) ; 10% Air: 90% NMP (A-90) ; 50% Etanol: 50% NMP (B-50) ; 30% Etanol:70% NMP (B-70) ; dan 10% Etanol: 90% NMP (B-90)

### 2.5.3 Pengaruh Penambahan Aditif

Aditif merupakan suatu zat yang ditambahkan pada larutan polimer, aditif berfungsi untuk memperjelas dan mempertebal struktur pori yang terbentuk. Pengaturan ukuran pori yang terbentuk juga dapat dilakukan dengan penambahan aditif, semakin banyak aditif yang ditambahkan maka ukuran pori yang terbentuk pada membran semakin besar.

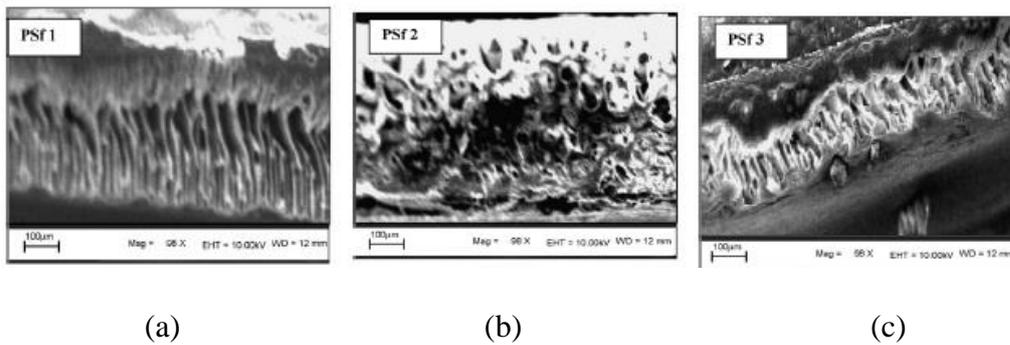
Aditif yang digunakan pada umumnya adalah polimer, tetapi peneliti lain ada juga menggunakan air sebagai aditif tambahan (Tan dkk., 2011). Pori yang terbentuk dengan penambahan aditif umumnya yaitu *finger like*, hal ini menunjukkan adanya laju difusi dari aditif terhadap nonpelarut sehingga meninggalkan pori pada membran ketika terjadi pepadatan (Liu dkk., 2003).

Beberapa hal yang berpengaruh terhadap pembentukan pori membran :

1. Berat molekul dari polimer aditif (Jung dkk., 2004)
2. Konsentrasi aditif (Chakrabarty dkk., 2008)
3. Komposisi aditif (jika aditif yang digunakan lebih dari satu) (Xu dan Qusay, 2003)

Penambahan aditif pada larutan polimer akan menurunkan kestabilan larutan secara termodinamika, hal ini akan mempercepat pepadatan dimana membran yang terbentuk memiliki lapisan berpori dan lapisan rapat yang lebih tipis.

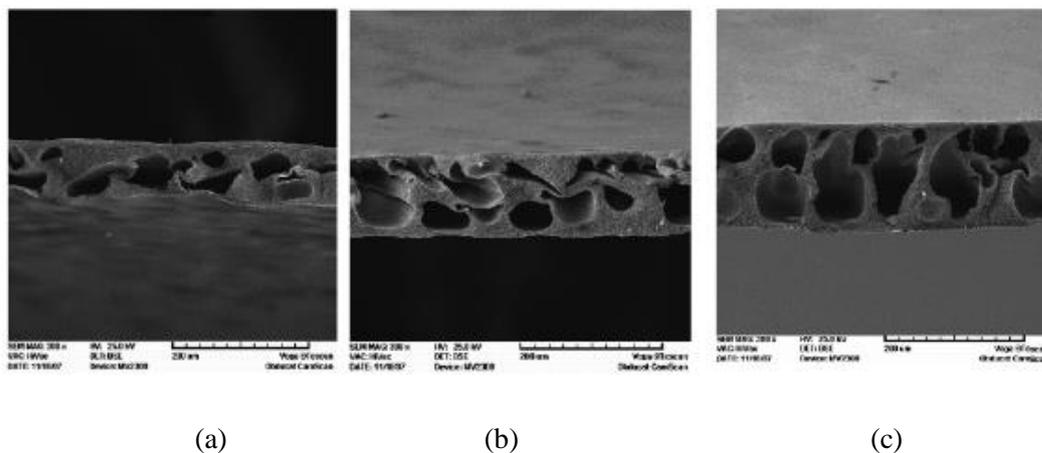
Polimer yang paling banyak digunakan sebagai aditif pada fabrikasi membran dengan metode inversi fasa adalah polietilen glikol (PEG) dan polivinilpirolidon (PVP). Chakrabarty dkk. (2008) melakukan penelitian tentang efek penambahan PEG dengan berat molekul 400, 6000, dan 20.000 dalton (Da) terhadap morfologi membran polisulfon. Semakin besar berat molekul yang digunakan maka lapisan pori *finger like* pada membran semakin besar. Gambar 2.14 menunjukkan foto SEM dari membran yang difabrikasi dengan variasi berat molekul PEG.



Gambar 2.14 Efek penambahan PEG dengan berbagai berat molekul : (a) 400, (b) 6000 dan (c) 20.000 Da (Chakrabarty dkk., 2008)

Selain berat molekul yang mempengaruhi ukuran pori yang terbentuk, konsentrasi aditif juga berpengaruh terhadap struktur dan ukuran pori. Semakin banyak aditif yang ditambahkan pada larutan polimer, maka kestabilan larutan tersebut semakin menurun, sehingga pembentukan membran berlangsung lebih cepat akibat difusi pelarut dan nonpelarut.

Saljoghi dkk. (2010) melakukan penelitian tentang efek konsentrasi PEG terhadap morfologi membran selulosa asetat (CA). Membran yang ditambahkan PEG dengan konsentrasi yang semakin banyak maka menghasilkan membran dengan ukuran pori yang semakin besar (Saljoughi dkk., 2010).

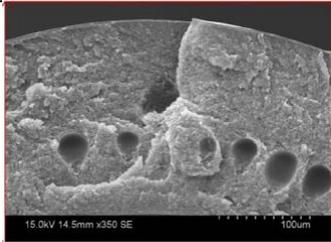
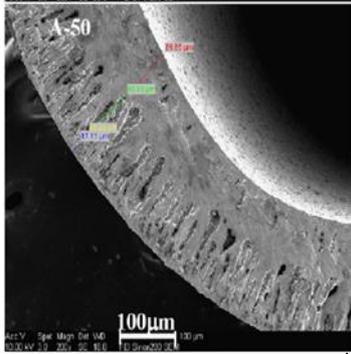


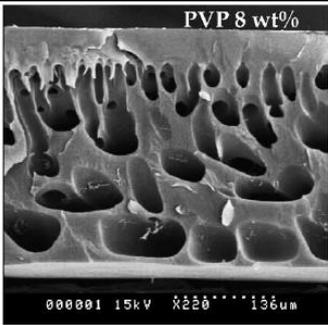
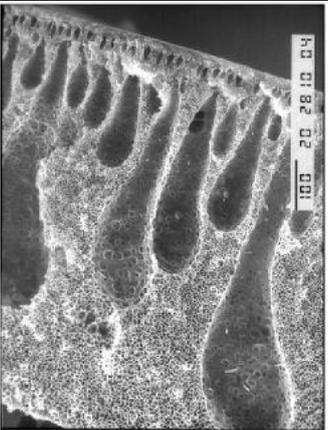
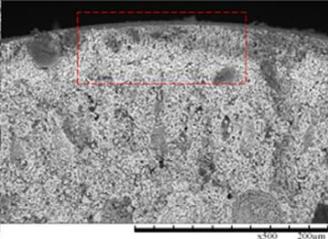
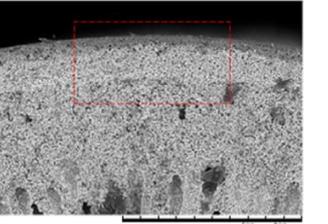
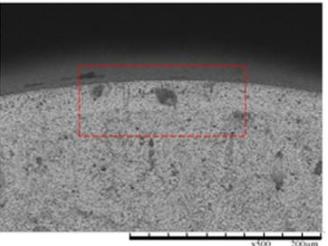
Gambar 2.15 Membran CA dengan penambahan aditif PEG (a) 0% ; (b) 5% dan (c) 10% (Saljoughi dkk, 2010)

Membran CA dengan penambahan PEG sebagai aditif menyebabkan ukuran pori pada membran membesar. Hal ini didukung oleh meningkatnya porositas membran dari 63 menjadi 74% ketika ditambahkan PEG sebesar 5 % berat. Apabila penambahan PEG ditingkatkan menjadi 10 % berat, maka porositas membran meningkat menjadi 86% (Saljoughi dkk., 2010).

PEG juga berpotensi untuk membentuk pori pada membran anorganik, penambahan *filler* anorganik pada larutan *dope* merupakan salah satu cara untuk memfabrikasi membran anorganik. Setelah membran dicetak dapat dilanjutkan dengan proses dekomposisi polimer melalui tahap kalsinasi. Selain aditif PEG, peneliti lain juga banyak melakukan penelitian mengenai pengaruh jenis polimer atau senyawa lain yang dapat membentuk pori pada membran. Tabel 2.5 menunjukkan aditif dan karakteristik pori dari membran yang difabrikasi oleh peneliti terdahulu.

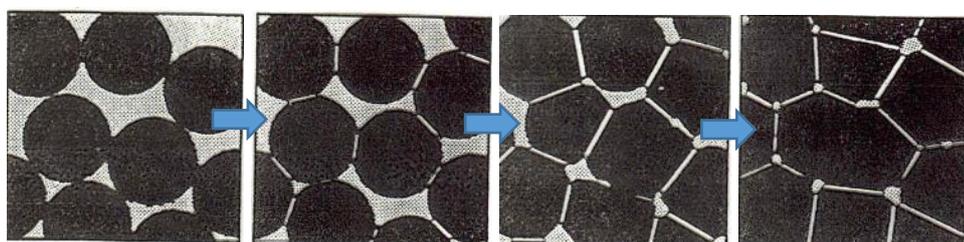
Tabel 2.5 Aditif yang digunakan pada fabrikasi membran

No	Material Membran	Aditif / Tebal Lapisan Rapat	Foto SEM	Referensi
1.	Matrimid 5218	PEO-PDMS / 104,54 $\mu\text{m}$		(Hu dkk., 2014)
2.	$\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$	PVP-H <sub>2</sub> O / 89 $\mu\text{m}$		(Tan dkk., 2011)

3.	Poliakrilonitril	PVP / 34,97 $\mu\text{m}$		(Jung dkk., 2004)
4.	Polisulfon	Aseton / 25 $\mu\text{m}$		(Barth dkk., 2000)
5.	NiO-YSZ/LSCF-YSZ	H <sub>2</sub> O 1 % berat / 62 $\mu\text{m}$		(Mohamed dkk., 2016)
6.	NiO-YSZ/LSCF-YSZ	H <sub>2</sub> O 2 % berat / 71 $\mu\text{m}$		(Mohamed dkk., 2016)
7.	NiO-YSZ/LSCF-YSZ	H <sub>2</sub> O 3 % berat / 80 $\mu\text{m}$		(Mohamed dkk., 2016)

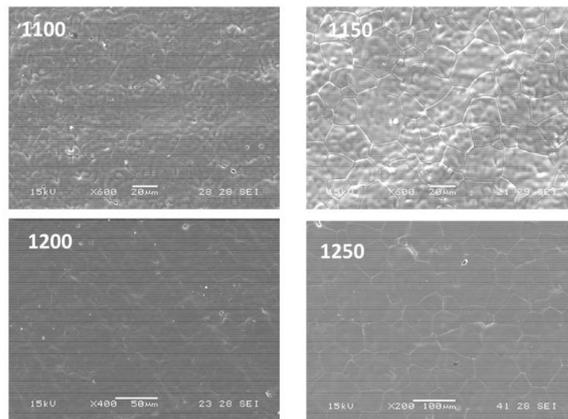
## 2.6 Sintering

Sintering merupakan proses perlakuan termal pada suatu padatan pada kisaran suhu 0,5-0,9 dari titik leleh padatannya. Pada keadaan padat tidak digunakan larutan atau cairan sama sekali, difusi atom pada reaksi zat padat membentuk suatu partikel yang memiliki porositas yang lebih rendah (kerapatan partikel meningkat) (Babakhani dkk., 2010). Sintering merupakan metode yang penting dalam pembuatan keramik. Parameter-parameter yang harus diperhatikan saat sintering, antara lain: suhu, waktu, kecepatan pemanasan, kecepatan pendinginan, atmosfer sintering, dan jenis material yang digunakan. Ada dua fenomena yang mungkin terjadi ketika membran disinter, pertama yaitu terjadinya penyusutan dan yang kedua yakni terjadinya keretakan (*cracking*). Penyusutan terjadi karena gas (*lubricant*) yang berada pada pori mengalami degassing, jika suhu sinter terus dinaikkan akan terjadi difusi permukaan antar partikel yang dapat menyebabkan berkurangnya porositas, sedangkan keretakan terjadi disebabkan adanya gas yang terjebak didalam material dan belum sempat keluar ketika proses sintering berlangsung, gas yang terjebak ini akan mendesak ke segala arah sehingga terjadinya *bloating* (mengembang), sehingga tekanan di pori lebih tinggi dibanding tekanan di luar. Apabila kualitas ikatan permukaan partikel rendah, maka tidak akan mampu menahan tekanan yang lebih besar sehingga menyebabkan keretakan.



Gambar 2.16 Proses densifikasi partikel

Zeng dkk. (2015) melakukan penelitian tentang suhu sintering pada membran  $\text{SrSc}_{0,1}\text{Co}_{0,9}\text{O}_3$ . Membran yang dihasilkan disinter pada suhu 1100, 1150, 1200 dan 1250°C. Semakin tinggi suhu sintering menyebabkan permukaan membran semakin rapat. Gambar 2.17 menunjukkan morfologi membran dari hasil penelitian Zeng dkk..



Gambar 2.17 Morfologi membran  $\text{SrSc}_{0,1}\text{Co}_{0,9}\text{O}_3$  dengan berbagai suhu sintering (Zeng dkk., 2015)

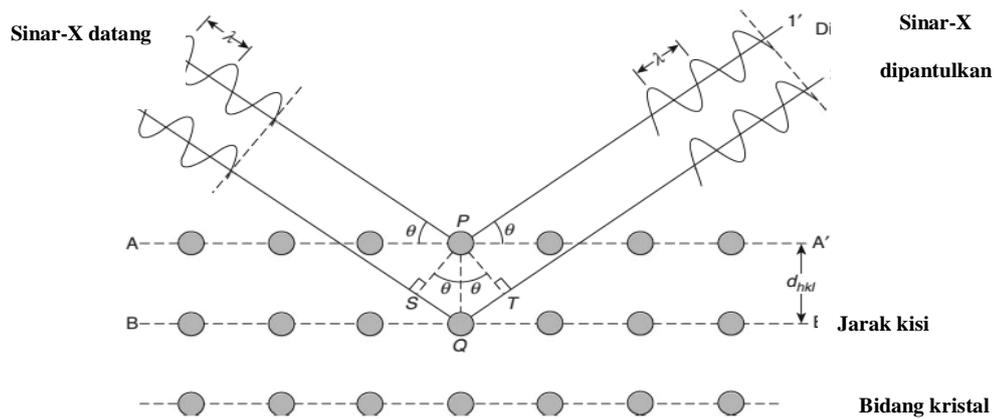
Setyaningsih dkk. (2016) melakukan penelitian tentang pengaruh sintering terhadap kekuatan mekanik membran datar asimetris  $\text{CaTiO}_3$ . Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin tinggi suhu sintering, maka kekuatan mekanik dari membran semakin meningkat. Hal ini menunjukkan bahwa membran yang disinter pada suhu yang lebih tinggi memiliki kerapatan antarpartikel yang semakin rapat, sehingga menyebabkan kekuatan mekanik membran datar asimetris meningkat.

## 2.7 Tinjauan Instrumen

### 2.7.1 Difraktometer Sinar-X (XRD)

Metode difraksi sinar X digunakan untuk mengetahui jenis kristal dan fasa dari suatu padatan, ketika padatan dikenai oleh sinar-x maka akan terjadi *scattering* atau pemantulan sinar dengan sudut tertentu. Pola pantulan dari setiap padatan berbeda, tergantung dari unsur-unsur penyusun material padatan tersebut. Berdasarkan pola difraksi material padatan dapat diketahui informasi mengenai struktur kirstal, kristalinitas dari suatu padatan, dan komposisi penyusun dari material padatan (West, 1984).

Pada prinsipnya, difraksi sinar X memanfaatkan pantulan dari sinar yang datang dengan sudut tertentu untk mengamati struktur kristal padatan. Sinar X yang mengenai atom penyusun material padat mengalami pantulan sesuai dengan besar sudut datangnya (Hammond, 2009).



Gambar 2.18 Prinsip difraksi sinar X

Difraksi sinar-X terjadi akibat adanya kontak antara foton-foton sinar-X dengan atom dalam sebuah kisi periodik jika jarak antar partikel-partikelnya yang tersusun teratur dan panjang gelombang cahaya yang digunakan sebanding. Gelombang terdifraksi akan saling menguatkan jika gelombangnya sefasa, tetapi akan saling meniadakan jika tidak sefasa. Sinar-X yang dipantulkan dalam fasa tersebut memberikan interferensi yang konstruktif. Dasar dari penggunaan difraksi sinar-X untuk mempelajari kisi kristal adalah berdasarkan persamaan Bragg (Hammond, 2009) :

$$n\lambda = 2d \sin \theta, \quad n = 1,2,3, \dots \quad (2.2)$$

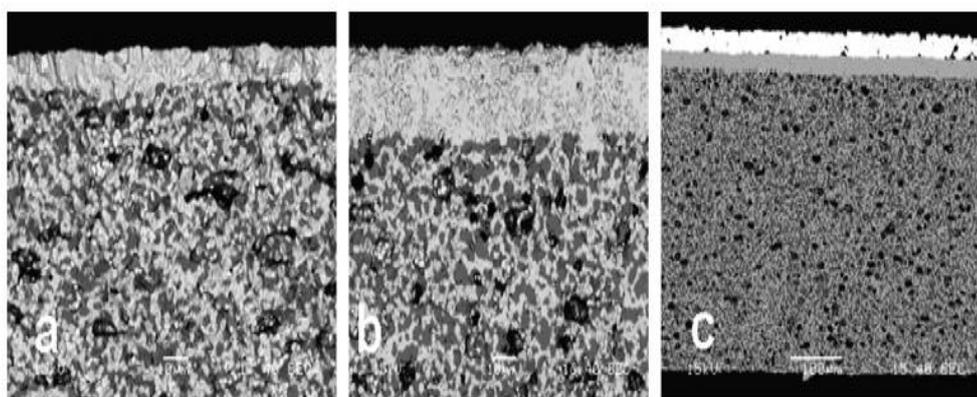
Selain untuk karakterisasi suatu mineral/kristal, kegunaan dan aplikasi XRD adalah membedakan antara material yang bersifat kristal dengan amorf, penentuan dimensi-dimensi sel satuan, menentukan struktur kristal dengan menggunakan *Rietveld refinement* dan analisis kuantitatif dari mineral.

### 2.7.2 Scanning Electron Microscopy

*Scanning electron microscopy* merupakan alat yang digunakan untuk mengetahui morfologi dan tekstur dari suatu bahan atau material. SEM dapat digunakan untuk mempelajari struktur material hingga  $10^{-2} \mu\text{m}$ . Pada prinsipnya, Sumber penembak elektron akan mengeluarkan energi untuk menembak elektron, elektron pada sampel akan terpental dengan sudut dan energi kinetik tertentu. Selanjutnya elektron tersebut dideteksi oleh detektor. Ada beberapa jenis volume

interaksi antara energi dengan elektron pada spesimen yang menyebabkan elektron yang terpental dan yang terdeteksi oleh detektor, yaitu *secondary electron*, *backscattering electron*, dan *auger electron* (Egerton, 2005).

Karakterisasi SEM membran datar asimetris berbasis perovskit memberikan informasi mengenai struktur permukaan membran, selain itu juga dapat melihat penampang lintang membran untuk mengamati lapisan rapat dan lapisan berpori yang terbentuk pada membran datar asimetris. Gambar 2.19 merupakan foto SEM dari hasil penelitian Fontaine dkk. yang mengamati membran LNb/NiO.

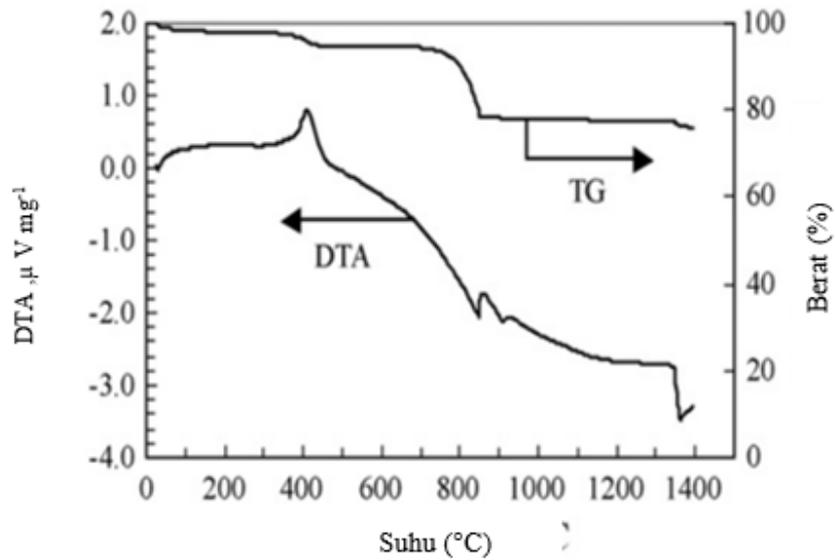


Gambar 2.19 Foto SEM Membran LNb/NiO (Fontaine dkk., 2009)

### 2.7.3 Thermogravimetry Analysis (TGA)

TGA (*Thermogravimetry Analysis*) merupakan teknik analisis termal berdasarkan perubahan massa suatu zat terhadap suhu atau waktu. Pada prinsipnya, sampel ditimbang dan dimasukkan ke dalam tempat spesimen. Selanjutnya dipanaskan dengan laju pemanasan yang konstan (berkisar antara 1 sampai 20°C/menit) hingga terjadi dekomposisi material pada rentang suhu yang sudah diatur sebelumnya (West, 1984).

Meng dkk. (2009) melakukan karakterisasi DTA/TGA terhadap perovskit  $\text{SrCo}_{0,9}\text{Sc}_{0,1}\text{O}_3$  yang dijadikan material untuk fabrikasi membran dengan modul *hollow fiber*. Gambar 2.20 menunjukkan hasil karakterisasi DTA/TGA yang dilakukan oleh Meng dkk.

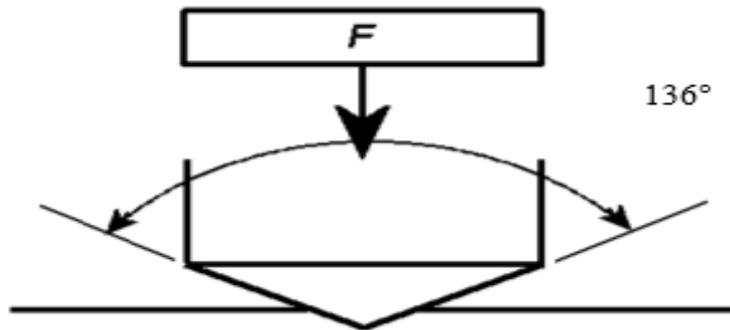


Gambar 2.20 Kurva TGA/DTA dari Perovskit SCS

Pada Gambar 2.20, kurva TGA menunjukkan 2 tahap penurunan berat. Tahap pertama pada suhu 350-450°C menunjukkan dekomposisi residu karbon yang masih tertinggal pada saat proses kalsinasi, hal ini juga didukung oleh kurva DTA yang menunjukkan puncak eksotermik pada suhu sekitar 400°C. Tahap kedua yaitu pada rentang suhu 700-860°C yang menunjukkan dekomposisi karbonat menjadi oksida selama proses pembentukan fasa perovskit. Setelah suhu 900°C tidak terjadi penurunan berat yang menandakan bahwa telah terbentuk fasa perovskit.

#### 2.7.4 Pengujian Sifat Mekanik Membran (*Microhardness Vickers*)

Kekerasan dari suatu material menunjukkan sifat mekaniknya. Kekerasan dapat didefinisikan sebagai kemampuan material dalam menahan tekanan atau beban yang diberikan. Skala kekerasan yang umum digunakan yaitu skala mohs dan vickers. Kedua skala tersebut tergantung dengan metode uji yang digunakan. Pengujian kekerasan yang banyak digunakan saat ini yaitu dengan metode Vickers (Alain dkk., 2017). Metode ini menggunakan indentor yang terbuat dari intan dan berbentuk seperti piramida dengan sudut puncak 136 derajat yang ditekan pada permukaan material uji. Kedua diagonal yang tercetak akibat bekas penekanan pada permukaan material diukur sebagai nilai luas area.



Gambar 2.21 Mekanisme Uji Kekerasan *Micro Vicker Hardness*

Angka kekerasan Vickers ( $H_v$ ) didefinisikan sebagai hasil bagi (koefisien) dari beban uji ( $P$ ) dan luas permukaan bekas luka tekan ( $L$ ) yang dikalikan dengan angka faktor 1,854 (Caravaca dkk., 2014) .

$$H_v = 1,854 \frac{P}{L^2} \quad (2.3)$$

Setyaningsih dkk. (2016) melakukan pengujian kekuatan mekanik membran datar asimetris  $\text{CaTiO}_3$  dengan metode *microhardness vickers*. Membran  $\text{CaTiO}_3$  yang disinter pada suhu 1100 dan 1200°C berturut-turut yaitu 3,5-21,4 dan 19,4-25,8  $H_v$ .

## **BAB III**

### **METODOLOGI PENELITIAN**

Penelitian ini dilakukan dalam 3 tahap, tahap pertama yaitu sintesis  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7328) dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3-\delta}$  (LSM 73) dengan metode *mechanochemical* yang dikombinasikan dengan metode *solid state*. Tahap kedua yaitu fabrikasi membran datar asimetris dengan metode inversi fasa, pada tahap ini akan dikaji pengaruh penambahan kombinasi aditif PEG dan air terhadap morfologi membran. Tahap ketiga yaitu uji stabilitas mekanik, karakterisasi morfologi membran dan pengukuran fluks oksigen membran datar asimetris yang difabrikasi.

#### **3.1 Alat dan Bahan**

##### **3.1.1 Alat**

Pada penelitian ini digunakan beberapa peralatan untuk keperluan sintesis, fabrikasi dan karakterisasi. Sintesis LSCF 7328 dan LSM 73 dilakukan dengan alat *planetary ball mill* Retsch PM-400, mortar, pastel porselen, krusibel alumina, neraca analitik, oven, *furnace*. XRD Philips X'Pert PN-1830, *Scanning Electron Microscopy* (SEM) ZEISS EVO MA 10, TGA, *Micro Vickers Hardness* dan GC Buck Scientific yang dilengkapi dengan Thermal Conductivity Detector (TCD).

##### **3.1.2 Bahan**

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah  $\text{La}_2\text{O}_3$  (Merck, 99,5%),  $\text{Co}_3\text{O}_4$  (Aldrich, 99,5%),  $\text{SrCO}_3$  (Merck, 99,0%),  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (Merck, 97%),  $\text{MnCO}_3$  (Merck, 99,9%), polyethersulfon (PESf), polietilen glikol (PEG) dengan berat molekul 8000, N-metil-2-pirrolidon (NMP) (Aldrich, 99,5%), metanol (Aldrich, 99,8%), aquades dan *compressed air*.

#### **3.2 Prosedur Penelitian**

##### **3.2.1 Sintesis LSCF 7328 dan LSM 73**

Sintesis LSCF 7328 dan LSM 73 dilakukan dengan metode kombinasi *mechanochemical* yang dikombinasikan dengan *solid state*. Masing-masing

perkusor yaitu  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Co}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , dan  $\text{MnCO}_3$  dipanaskan terlebih dahulu dalam oven dengan suhu  $105^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Selanjutnya, perkusor ditimbang dengan jumlah tertentu seperti yang ditunjukkan tabel 3.1.

Tabel 3.1 Komposisi perkusor untuk sintesis LSCF 7328 dan LSM 73

Oksida Perovskit	Massa Perkusor (g)				
	$\text{La}_2\text{O}_3$	$\text{SrCO}_3$	$\text{Co}_3\text{O}_4$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{MnCO}_3$
LSCF 7328	25,01	9,71	3,52	14,00	-
LSM 73	25,17	4,96	-	-	25,38

Perkusor dimasukan ke dalam wadah *ballmill* dan ditambahkan dengan metanol sebanyak 40 mL. Kemudian *planetary ball mill* dijalankan dengan kecepatan 600 rpm selama 2 jam. Setelah itu, campuran dipanaskan diatas *hotplate* pada suhu  $85^\circ\text{C}$  hingga metanol menguap. Selanjutnya, campuran perkusor dikalsinasi pada suhu  $400^\circ\text{C}$  selama 1 jam dan dilanjutkan hingga suhu  $890^\circ\text{C}$  dan ditahan selama 2 jam dengan kenaikan suhu  $3^\circ\text{C}$  per menit, proses ini diulang dua kali. Serbuk yang terbentuk digerus dan dilakukan sintering pada suhu  $1000^\circ\text{C}$  selama 2 jam dengan kenaikan suhu sebesar  $3^\circ\text{C}$  per menit. Serbuk yang terbentuk dikarakterisasi dengan XRD, sampel tersebut di sinari dengan sinar X dari sumber sinar  $\text{Cu K}\alpha$  ( $1,54056 \text{ \AA}$ ).

### 3.2.2 Fabrikasi Membran Datar Asimetris LSCF 7328 dan LSM 73

Membran datar asimetris difabrikasi dengan metode inversi fasa, metode ini digunakan untuk mendapatkan morfologi membran yang rapat dan berpori. Pada penelitian ini dilakukan variasi konsentrasi Polietilen Glikol (PEG) dengan berat molekul 8000 dan air. Tabel 3.2 menunjukkan komposisi larutan cetak yang digunakan beserta nonpelarut.

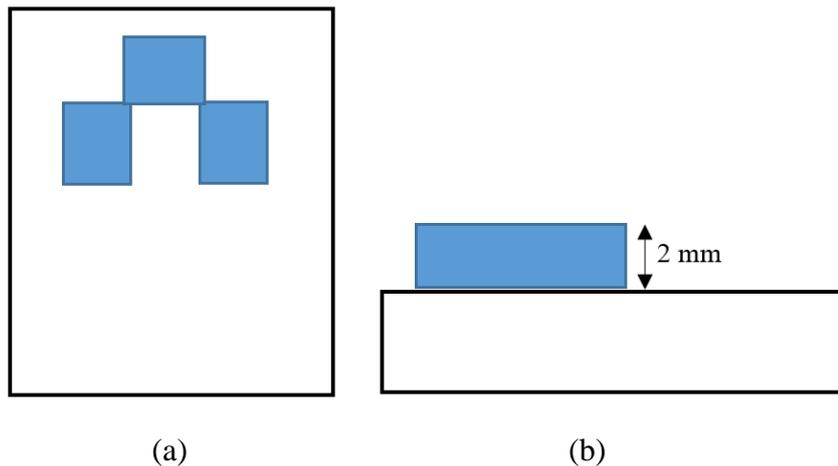
Polietersulfon(PESf), polietilen glikol dan air sebagai aditif dilarutkan dengan pelarut NMP, setelah PESf dan aditif larut sempurna kemudian ditambahkan serbuk perovskit (LSCF 7328 atau LSM 73) ke dalam erlenmeyer. Campuran tersebut diaduk selama 48 jam hingga homogen.

Tabel 3.2 Komposisi larutan cetak dan nonpelarut

LSCF 7328 (% berat)	LSM 73 (% berat)	PESf (% berat)	NMP (% berat)	Aditif (% berat)		Nonpelarut (% berat)	Kode
				PEG	H <sub>2</sub> O		
52,1	-	6,7	41,2	-	-	H <sub>2</sub> O	A1S
47,1	-			3,5	1,5		B1S
				4	1		C1S
				4,5	0,5		D1S
				5	0		E1S
-	52,1			-	-		A2S
-	47,1			3,5	1,5		B2S
				4	1		C2S
				4,5	0,5		D2S
				5	0		E2S

Setelah campuran homogen, tahap selanjutnya yaitu pencetakan membran dengan metode inversi fasa endap-remam. Suspensi dimasukkan kedalam cetakan plat kaca seperti yang ditunjukkan Gambar 3.1, selanjutnya direndam dengan nonpelarut (air). Suspensi ketika mengalami kontak dengan nonpelarut mengalami *solidification* atau pematatan sehingga terbentuk membran mentah yang masih mengandung polyethersulfon (PESf).

Membran mentah yang terbentuk dikarakterisasi dengan *Scanning electron microscopy* (SEM) untuk mengetahui morfologi membran yang dihasilkan. Selanjutnya, membran mentah disinter pada suhu 1250°C selama 4 jam. Setelah sintering dilakukan, membran keramik yang dihasilkan kemudian dikarakterisasi dengan *Scanning electron microscopy* (SEM) untuk mengetahui penyusutan pori.



Gambar 3.1 Sketsa cetakan membran : (a) tampak atas dan (b) tampak samping

### 3.2.3 Analisis *Thermogravimetry* (TG)

Analisis TG dilakukan pada membran mentah, analisis ini dilakukan untuk mengetahui suhu sintering dan suhu dekomposisi polimer pada membran mentah, sehingga nantinya dihasilkan membran keramik. Analisis dilakukan pada suhu 25°C hingga 1100°C dengan kenaikan suhu sebesar 10°C/menit.

### 3.2.4 Pengujian Kerapatan Membran dengan Metode Uji Tetes Air

Pengujian kerapatan membran dilakukan dengan metode uji tetes air (Fansuri dkk., 2017). Permukaan membran perovskit yang telah disinter ditetesi air dan didiamkan sekitar 3-5 menit. Kemudian pengamatan dilakukan selama air tersebut berada dipermukaan membran dan diambil gambar membran sesudah ditetesi air menggunakan kamera.

### 3.2.5 Pengukuran Pori, Porositas dan Volume Pori Membran LSCF 7328 dan LSM 73

Pengukuran pori dilakukan dengan cara mengukur 5 titik pori pada hasil foto SEM penampang lintang dengan penggaris. Kemudian hasil pengukuran pada masing-masing titik dimasukkan ke dalam persamaan 3.1, lalu hasil pengukuran dihitung untuk mendapatkan nilai rata-ratanya.

$$\text{Ukuran pori } (\mu\text{m}) = \frac{\text{ukuran pori (cm)}}{\text{ukuran garis skala (cm)}} \times \text{nilai skala } (\mu\text{m}) \quad (3.1)$$

Selanjutnya, metode adsorpsi cairan digunakan untuk mengukur porositas dan volume pori membran (Saljoughi dkk., 2009). Membran datar dipotong dengan dimensi 1 x 1 cm dan direndam ke dalam air selama 20-30 menit. Massa kering ( $W_d$ ) dan massa membran setelah perendaman ( $W_w$ ) ditimbang menggunakan neraca analitik. Proses ini dilakukan sebanyak 3 kali untuk mengurangi kesalahan pengukuran. Kemudian penentuan porositas dan volume membran masing-masing dihitung menggunakan persamaan 3.2 dan 3.3.  $A$  merupakan luas permukaan membran (1x1 cm),  $h$  merupakan tinggi membran atau tebal membran (2 mm).

$$P (\%) = \frac{W_w - W_d}{A \times h} \times 1000 \quad (3.2)$$

$$\text{Volume pori (mL.g}^{-1}\text{)} = \frac{W_w - W_d}{W_d \times \rho_{air}} \quad (3.3)$$

### 3.2.6 Karakterisasi *Thermomechanical Anayzer* (TMA)

Karakterisasi membran dengan TMA dilakukan untuk mengetahui koefisien muai panas dari membran LSCF 7328 dan LSM 73 yang difabrikasi. Karakterisasi TMA dilakukan pada rentang suhu 400 - 1000°C dengan laju kenaikan suhu 5°C/menit.

### 3.2.7 Pengujian Kekerasan Membran Rapat Asimetris

Membran keramik yang dihasilkan diuji dengan metode *Micro Vickers Hardness* untuk mengetahui tingkat kekerasannya. Salah satu syarat pengujian dengan metode ini yaitu permukaan membran harus rata. Indentor yang digunakan berupa intan dengan bentuk piramida. Indentasi yang dihasilkan berupa piramid. Gaya yang diberikan saat indentasi adalah 0,5 N dan dipertahankan selama 4 detik.

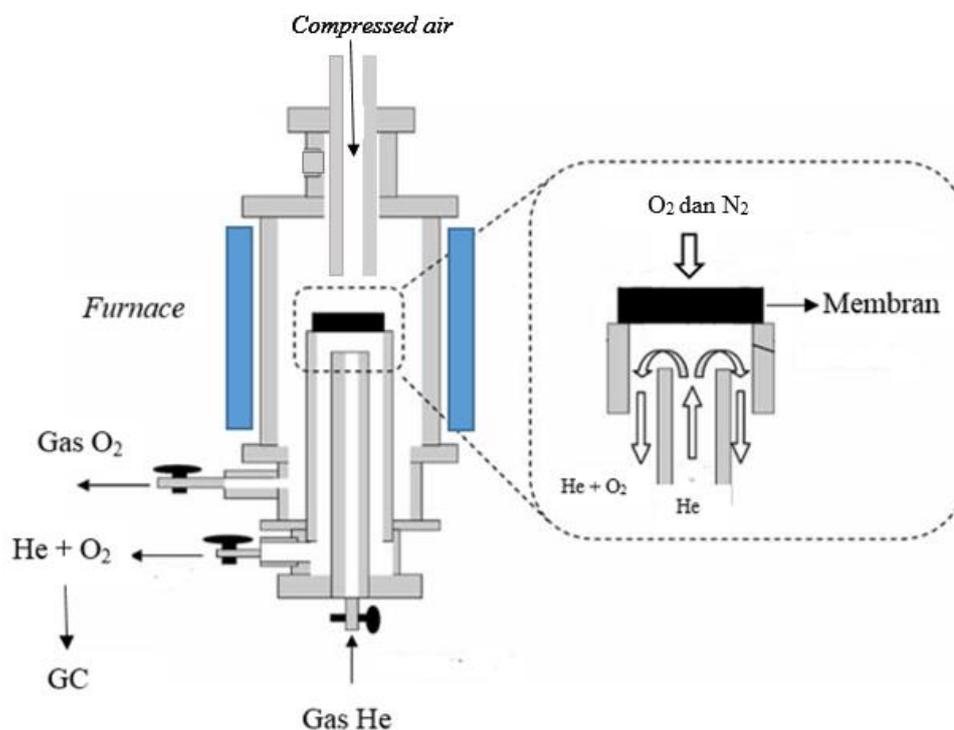
### 3.2.8 Pengukuran Fluks Oksigen Membran LSCF 7328

Pengukuran fluks oksigen dari membran datar berbasis LSCF 7328 dilakukan pada reaktor uji yang sesuai prinsip kerja yang dilaporkan oleh Utomo (2014). Desain reaktor uji fluks ditunjukkan oleh Gambar 3.2. Membran di tempelkan pada pipa seperti yang terlihat pada gambar. Gas oksigen dialirkan dengan laju alir 150 mL/menit pada sisi umpan, pada sisi permeat gas helium yang

berfungsi sebagai gas pembawa dialirkan dengan laju alir 30 mL/menit. Suhu operasi yang digunakan pada pengukuran fluks oksigen yaitu 700°C dengan laju kenaikan suhu sebesar 5°C/menit. Pemanasan pada suhu tersebut ditahan selama 30 menit pada suhu yang telah ditentukan, selanjutnya fluks oksigen diukur selama 15 menit. Gas permeat diukur secara langsung menggunakan kromatografi gas (GC). Fluks oksigen dihitung dengan persamaan berikut :

$$J_{O_2} = F \times CO_2 \times S^{-1} \quad (3.5)$$

Dimana  $J_{O_2}$  merupakan fluks oksigen ( $\text{mL} \cdot \text{menit}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ ),  $F$  merupakan laju alir gas helium ( $\text{mL}/\text{menit}$ ),  $CO_2$  adalah konsentrasi gas oksigen yang terukur pada sisi permeat (%) dan  $S$  yaitu luas efektif membran ( $\text{cm}^2$ ) (Utomo, 2014).



Gambar 3.2 Reaktor pengujian fluks oksigen

### 3.3 Fabrikasi, Karakterisasi dan Pengujian Fluks Oksigen Membran *Hollow Fiber* LSCF 7328

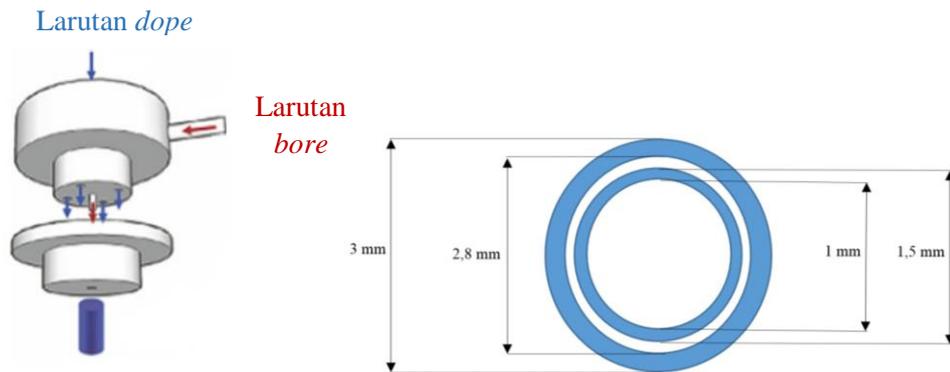
Membran *hollow fiber* difabrikasi dengan metode inversi fasa berbasis teknik ko-ekstrusi dan diikuti proses sintering. Larutan *dope* dibuat dengan mencampurkan LSCF 7328, PESf dan NMP, serta PEG (BM = 8000) sebagai aditif didalam *chamber*. *Chamber* tersebut kemudian dimasukkan ke dalam *planetary ballmill* yang dijalankan dengan kecepatan 196 rpm selama 48 jam. Setelah proses *milling* selesai, viskositas larutan *dope* diukur menggunakan viskometer (DVI Viscometer: Brookfield Engineering, Middleboro, MA). Pada saat pencetakan membran *hollow fiber*, air digunakan sebagai larutan *bore* dan koagulan eksternal (nonpelarut). Larutan *dope* dan *bore* dimasukkan ke dalam *double orifice spinneret*. Kemudian setelah dicetak, membran direndam didalam bak koagulan selama 24 jam. Selanjutnya, membran dilurukan secara manual hingga didapatkan membran *hollow fiber* yang lurus. Komposisi larutan *dope* dan parameter ekstrusi ditunjukkan oleh Tabel 3.3 dan Tabel 3.4, sedangkan desain dari *double orifice spinneret* dan profil sintering ditunjukkan oleh Gambar 3.3 dan Gambar 3.4. Membran *hollow fiber* baik sebelum dan setelah sintering dikarakterisasi dengan SEM, serta kekuatan mekanik membran diuji dengan *3-Point Bending*.

Tabel 3.3 Komposisi larutan *dope*

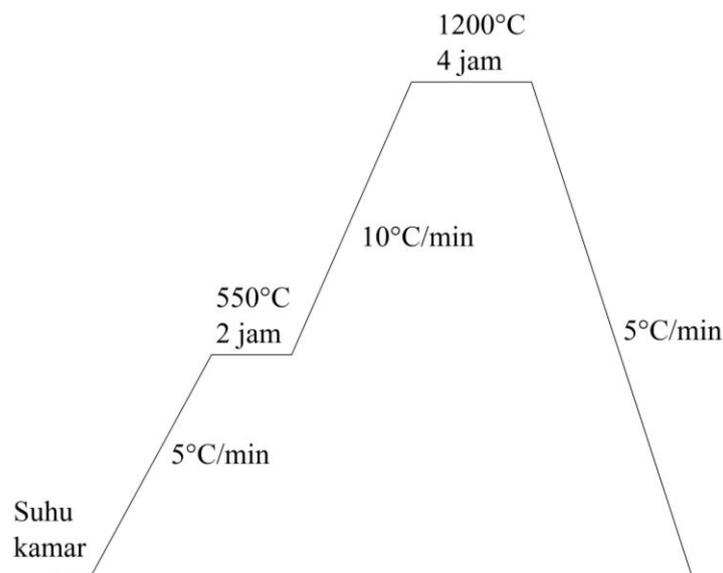
LSCF 7328 (% berat)	PESf (% berat)	NMP (% berat)	PEG (% berat)	Kode Membran	Kode setelah sintering
64,98	6,3	25,72	3	HF-1	HF-1S
62,98	6,3	25,72	5	HF-2	HF-2S

Tabel 3.4 Parameter Ekstrusi

Laju alir larutan <i>dope</i> (mL/min)	Laju alir larutan <i>bore</i> (mL/min)	<i>Air gap</i> (cm)
8	8	10



Gambar 3.3 Desain *double orifice spinner*



Gambar 3.4 Profil sintering membran *hollow fiber* LSCF 7328

Pengukuran fluks oksigen membran *hollow fiber* LSCF 7328 memiliki prinsip yang sama dengan metode yang dipaparkan pada subbab 3.2.8, tetapi posisi membran *hollow fiber* disegel secara vertikal dan bagian ujung (yang paling dekat dengan pipa *compressed air*) disegel dengan lem keramik.

## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1 Hasil Sintesis $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$ (LSCF 7328) dan $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ (LSM 73)

Sintesis LSCF 7328 dilakukan dengan perkusor seperti yang ditunjukkan oleh Tabel 3.1. Setelah perkusor dihaluskan dengan *planetary ball mill* maka dihasilkan campuran perkusor yang berwarna merah bata. Hal ini menunjukkan bahwa pada saat penggerusan dengan *planetary ball mill* perkusor tercampur secara merata. Warna merah bata yang terlihat pada hasil penggerusan dikarenakan jumlah perkusor  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  lebih banyak dibandingkan perkusor lainnya seperti  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$  dan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ .

Selain LSCF 7328, material lain yang disintesis adalah LSM 73. Sintesis material tersebut menggunakan perkusor yang juga ditunjukkan oleh Tabel 3.1. Penggerusan dengan *planetary ball mill* berlangsung selama 2 jam dan menghasilkan campuran perkusor yang berwarna putih kecokelatan (krem). Gambar 4.1 menunjukkan campuran perkusor yang terbentuk.



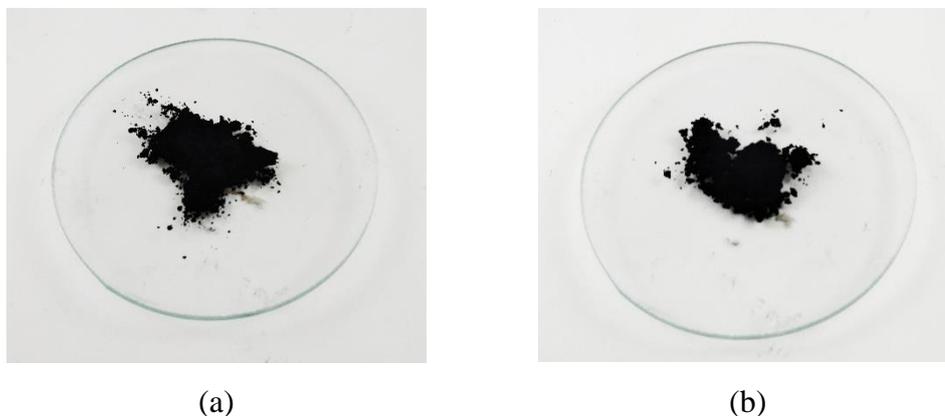
(a)

(b)

Gambar 4.1 Campuran perkusor setelah penggerusan untuk sintesis : (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 73

Campuran perkusor kemudian dikalsinasi sesuai prosedur pada sub Bab 3.2.1. Setelah proses kalsinasi, terjadi perubahan warna pada campuran perkusor. Warna perkusor LSCF 7328 berubah menjadi hitam, sedangkan perkusor

LSM 73 menjadi hitam kebiruan. Fenomena ini menunjukkan bahwa pada saat kalsinasi terjadi reaksi padat-padat yang menghasilkan LSCF 7328 dan LSM 73 yang berbeda dengan bahan awalnya akibat dari proses kalsinasi. Gambar 4.2 menunjukkan produk sintesis setelah kalsinasi.

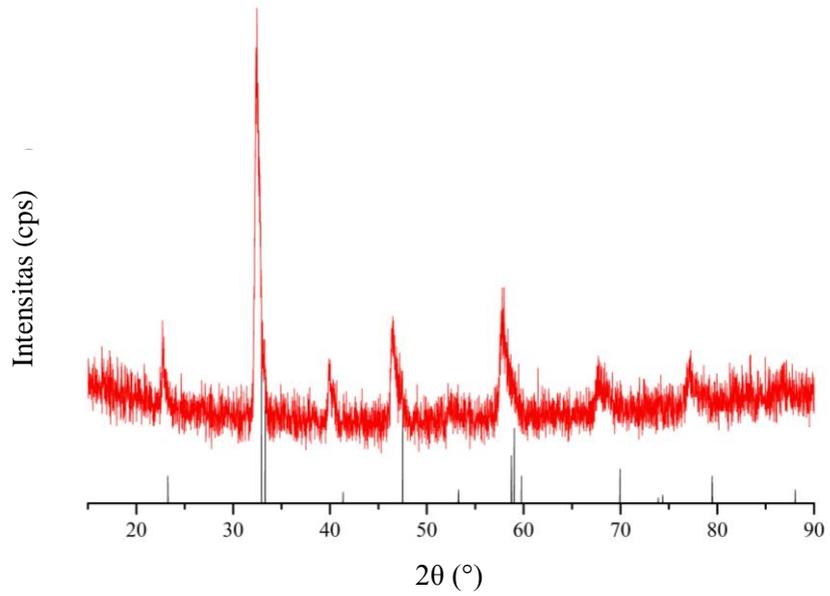


Gambar 4.2 Serbuk hasil sintesis: (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 73

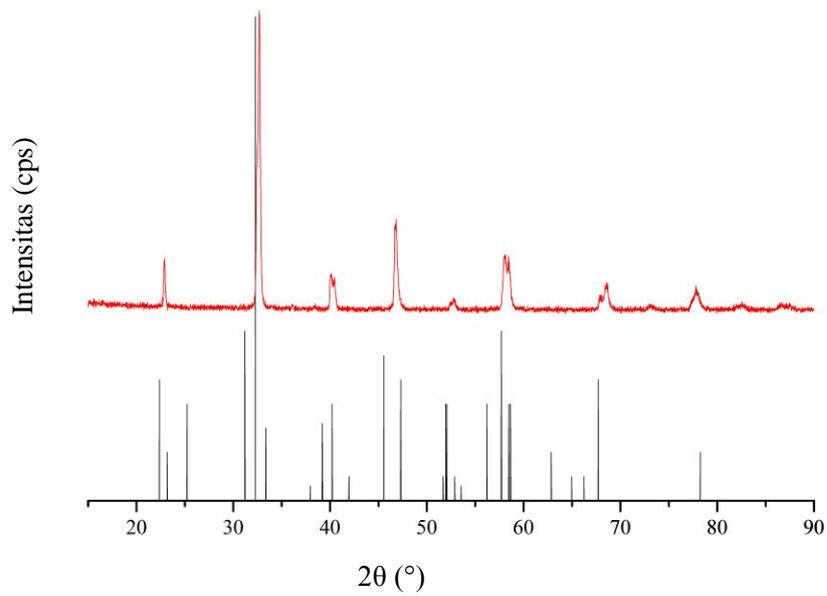
Setelah terjadi perubahan warna pada serbuk yang menunjukkan kemungkinan telah terjadinya pembentukan LSCF 7328 dan LSM 73 maka selanjutnya dilakukan pembuktian struktur kristal material tersebut dengan difraksi sinar-X (XRD). Difraktogram sampel LSCF 7328 dibandingkan dengan  $\text{LaCoO}_3$  sedangkan sampel LSM 73 dibandingkan dengan  $\text{LaMnO}_3$ . Gambar 4.3 dan Gambar 4.4 menunjukkan difraktogram dari material yang disintesis.

Pada Gambar 4.3 dapat diamati bahwa pola difraksi antara material LSCF 7328 dengan data standar yang dibandingkan memiliki kesamaan pola puncak. Tetapi, puncak-puncak dari LSCF 7328 mengalami pergeseran ke sebelah kiri menuju  $2\theta$  yang lebih kecil. Pergeseran ini menunjukkan bahwa walaupun LSCF 7328 memiliki struktur yang serupa dengan  $\text{LaCoO}_3$  (*unit cell* = 3,820 Å) sebagai pembanding, ukuran sel satuan (*unit cell*)-nya sedikit lebih besar yaitu 3,847 Å. Hal dapat terjadi karena adanya substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  terhadap  $\text{La}^{3+}$  dan  $\text{Fe}^{3+}$  terhadap  $\text{Co}^{3+}$ . Jari-jari ion  $\text{Sr}^{2+}$  (1,32 Å) dan  $\text{Fe}^{3+}$  (0,645 Å) sedikit lebih besar daripada ion-ion yang digantikannya yaitu secara berurutan  $\text{La}^{3+}$  (1,172 Å) dan  $\text{Co}^{3+}$  (0,610 Å) (Babakhani dkk., 2011). Perbedaan ukuran ion tersebut menyebabkan jarak antar

ion pada kristal LSCF 7328 semakin besar sehingga menyebabkan membesarnya bidang kristal material perovskit (Fansuri dkk., 2017).



Gambar 4.3 Difraktogram LSCF 7328 dan standart No PDF 00-025-1060



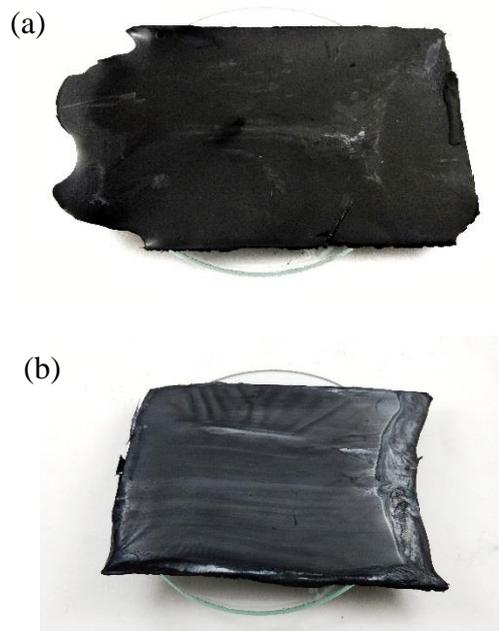
Gambar 4.4 Difraktogram LSM 73 dan standart No PDF 00-035-1353

## 4.2 Fabrikasi Membran Datar Asimetris LSCF 7328 dan LSM 73

Membran datar asimetris berbasis perovskit disintesis dengan metode inversi fasa rendam-endap. Pada metode ini digunakan air sebagai koagulan untuk memadatkan membran pada saat perendaman. Parameter dan komposisi lengkap mengenai membran yang difabrikasi pada penelitian ini ditunjukkan pada Tabel 3.2.

Sebelum disinter, membran mentah LSCF 7328 berwarna hitam karena mengandung serbuk perovskit LSCF 7328, sedangkan membran mentah LSM 73 berwarna biru kehitaman. Warna membran mengikuti warna penyusun dengan komposisi tertinggi. Gambar 4.5 menunjukkan membran datar LSCF 7328 dan LSM 73 sebelum disinter.

Membran mentah LSCF 7328 dan LSM 73 selanjutnya diamati morfologi permukaan atas, permukaan bawah dan penampang lintang. Hasil pengambilan data SEM ditunjukkan pada Tabel 4.1 - 4.4, tabel tersebut dapat membantu membandingkan morfologi membran yang dipengaruhi oleh variasi rasio PEG dan H<sub>2</sub>O.



Gambar 4.5 Membran mentah : (a) LSCF 7328 dan (b) LSM 73

Pada Tabel 4.1 dan Tabel 4.3 dapat diketahui bahwa morfologi membran mentah dapat diamati dan struktur pori membran dapat diidentifikasi dengan baik. Secara umum pori membran yang terbentuk memiliki struktur *finger like* dan memiliki bagian yang rapat pada dari penampang lintang membran. Membran dengan struktur pori *finger like* umumnya memiliki kekuatan mekanik yang lebih baik jika dibandingkan dengan membran yang memiliki struktur pori *sponge like*. Pada permukaan atas membran terlihat adanya pori, khususnya pada foto dari permukaan atas membran LSCF 7328 tanpa aditif. Penampakan cekungan yang berbentuk seperti butiran padi pada permukaan atas membran LSCF 7328 tanpa aditif, LSCF 7328 dengan PEG: H<sub>2</sub>O = 3,5 % berat : 1,5 % berat dan LSCF dengan PEG : H<sub>2</sub>O = 5 % berat : 0 % berat kemungkinan oleh gelembung udara yang terbentuk saat pencetakan, namun belum diketahui mengapa berbentuk seperti itu. Cekungan yang umumnya terjadi pada permukaan membran yang dicetak dengan metode rendam endap adalah berbentuk bola. Sebaliknya, permukaan membran bagian bawah yang saat dicetak bersentuhan dengan permukaan gelas sebagai media pencetaknya, tidak ditemukan cekungan walaupun permukaannya tidak mulus (permukaan bagian bawah membran terlihat kasar). Hasil pengamatan SEM pada penampang lintang membran menunjukkan bahwa membran LSCF 7328 memiliki keseragaman pori yang lebih baik dibandingkan membran LSM 73 dan keduanya memiliki struktur yang asimetris.

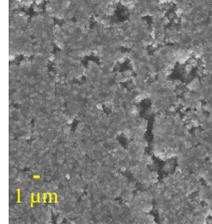
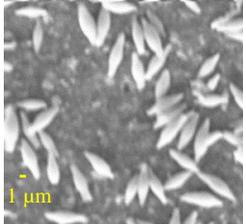
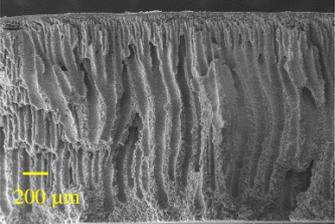
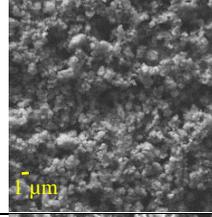
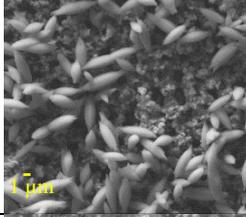
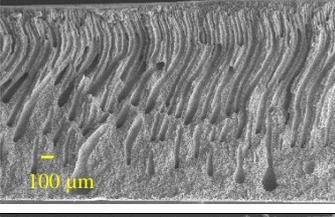
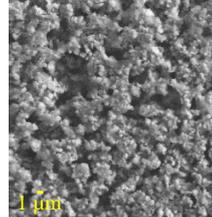
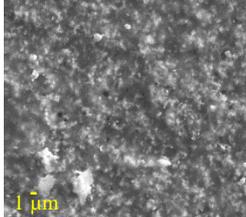
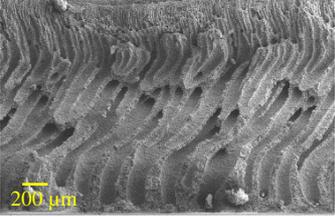
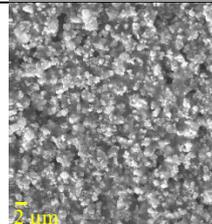
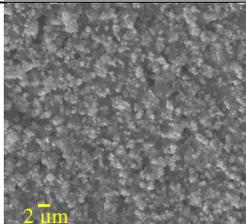
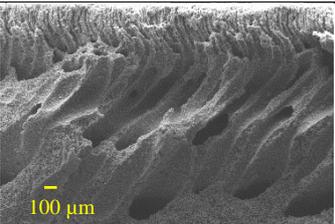
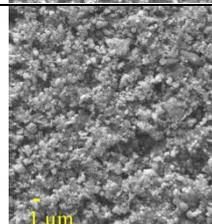
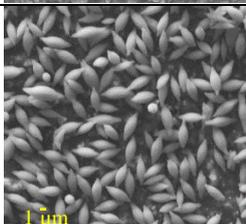
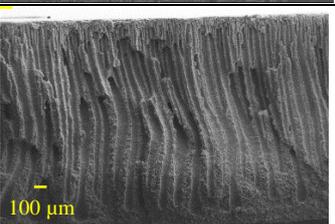
Penambahan jumlah PEG meningkatkan ukuran pori membran. Semakin besar jumlah PEG yang ditambahkan pada larutan *dope*, semakin besar pula ukuran porinya. Hal ini terjadi karena penambahan PEG menyebabkan peningkatan viskositas larutan *dope* yang mempercepat pematangan (*solidify*). PEG yang ditambahkan terlarut pada nonpelarut dan meninggalkan pori pada membran (Saljoughi dkk., 2010). Selain itu, PEG dengan berat molekul 8000 yang digunakan pada penelitian ini merupakan polimer yang memiliki ukuran molekul yang besar, sehingga pori yang dihasilkan juga semakin besar. Apabila masih ada PEG 8000 dalam jumlah tertentu yang masih tertinggal pada membran maka pada saat sintering PEG akan terdekomposisi serta meninggalkan pori-pori tambahan. Menurut Saljoughi dkk (2010), hal-hal yang mempengaruhi pembentukan pori

pada membran antara lain : berat molekul polimer aditif, konsentrasi aditif pada larutan *dope*, pemilihan pelarut dan nonpelarut.

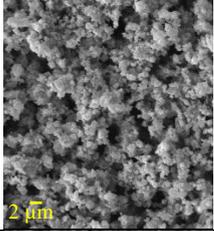
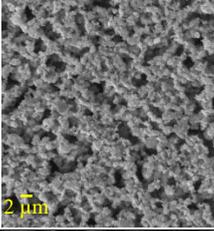
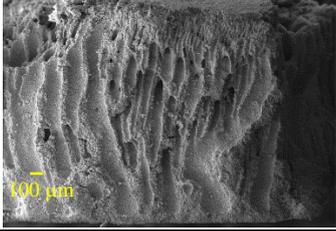
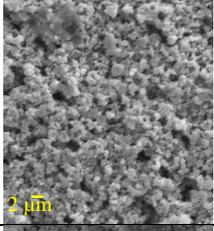
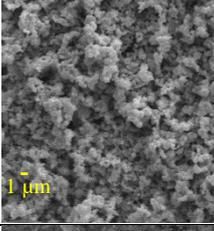
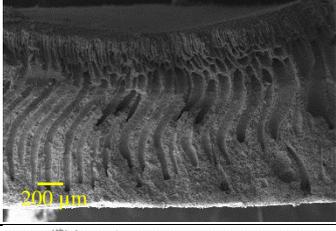
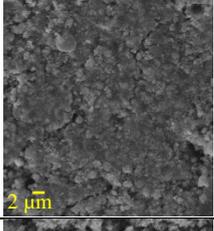
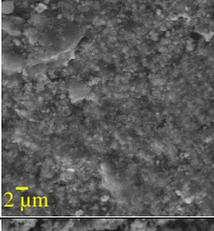
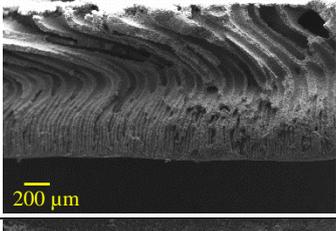
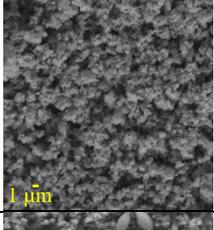
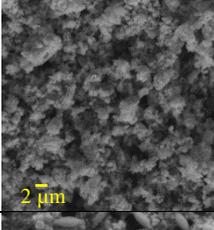
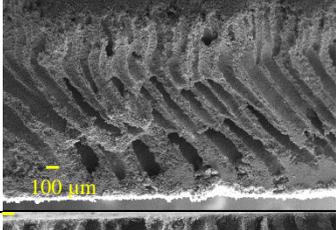
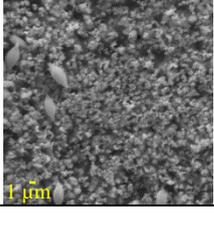
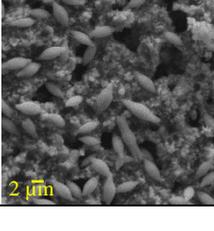
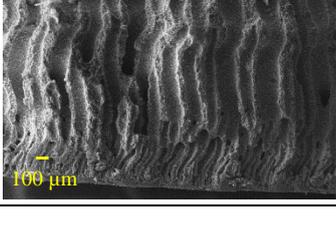
Foto SEM pada Tabel 4.1 hingga 4.4 menunjukkan bahwa secara umum pori yang terbentuk memiliki struktur *finger like*. Pori dengan struktur *finger like* terbentuk ketika difusi nonpelarut lebih besar dibandingkan laju difusi pelarut. Ukuran pori *finger like* semakin membesar dengan bertambahnya jumlah PEG, penambahan air pada larutan *dope* secara teoritis mengurangi ukuran *finger like*, tetapi pada hasil foto SEM bagian penampang lintang menunjukkan terjadinya fluktuasi ukuran lapisan rapat yang terbentuk. Hal ini dapat disebabkan jumlah PEG yang jauh lebih banyak dibandingkan jumlah air yang ditambahkan sebagai aditif pada larutan *dope*.

Setelah mendapatkan membran yang memiliki struktur asimetris, morfologi membran setelah proses sintering juga diamati dengan SEM. Tabel 4.2 dan Tabel 4.4 menunjukkan morfologi membran perovskit yang telah disinter. Pori membran setelah sintering memiliki struktur yang sama dengan membran sebelum sintering. Setiap material memiliki perbedaan suhu optimum untuk proses sintering, sehingga proses densifikasi partikel tergantung pada profil sintering yang digunakan pada setiap penelitian. Pada penelitian ini menggunakan suhu sintering yaitu 1200°C dengan penahanan selama 4 jam. Membran LSCF 7328 memiliki permukaan yang lebih rapat dibandingkan membran LSM 73, kerapatan antar partikel meningkatkan performa membran perovskit dan selektivitas oksigen untuk aplikasi pemisahan oksigen. Apabila terdapat pori yang cukup besar pada permukaan membran, hal ini memungkinkan gas-gas lain menembus membran ke sisi permeat (dengan kata lain terjadi kebocoran). Tetapi, foto SEM penampang lintang membran LSM 73 memiliki lapisan rapat yang lebih tebal dibandingkan lapisan rapat yang dimiliki oleh LSCF 7328. Hal ini dapat disebabkan karakter padatan LSCF 7328 dan LSM 73 berbeda pada saat proses inversi fasa berlangsung. Jika ditinjau dari tebal lapisan rapat, dapat diprediksi LSM 73 memiliki nilai fluks permeasi oksigen yang lebih kecil dibandingkan dengan membran LSM 73.

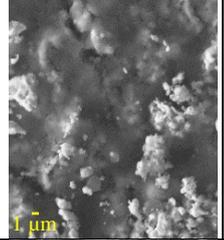
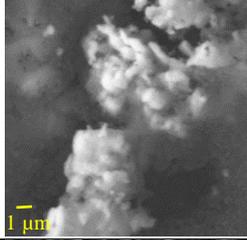
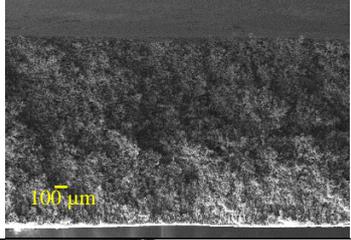
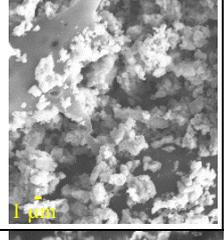
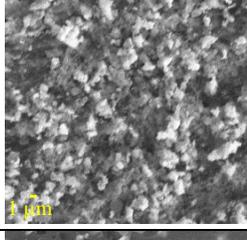
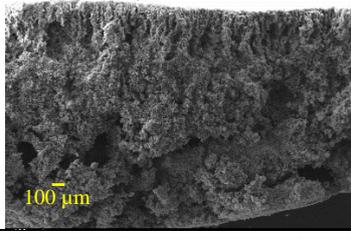
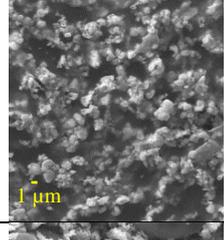
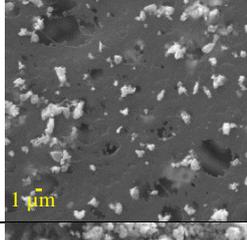
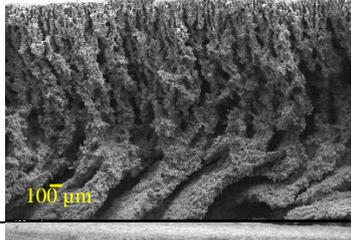
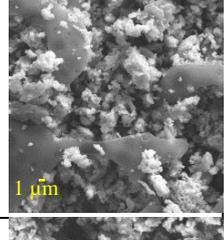
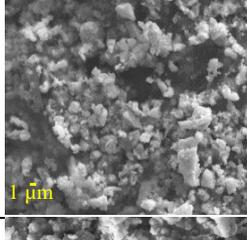
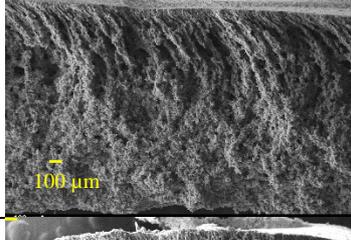
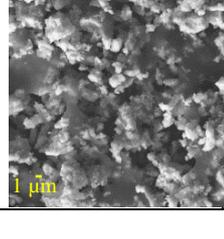
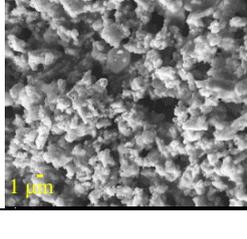
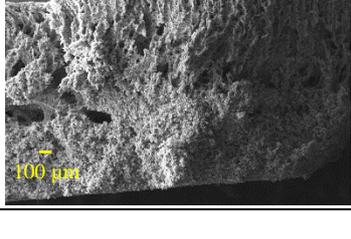
Tabel 4.1 Morfologi membran mentah LSCF 7328

Aditif (% berat)		Permukaan bawah	Permukaan atas	Penampang lintang
PEG	H <sub>2</sub> O			
0	0			
3,5	1,5			
4	1			
4,5	0,5			
5	0			

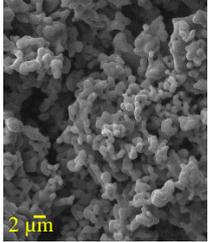
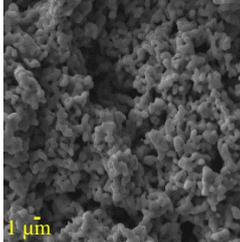
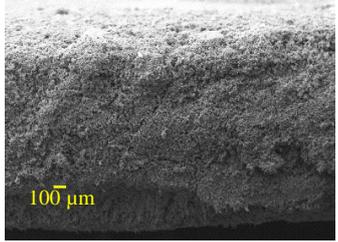
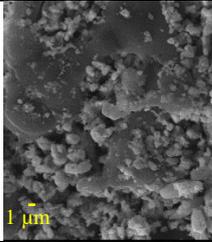
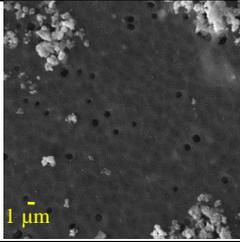
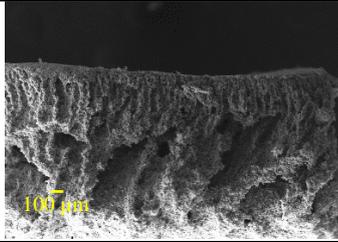
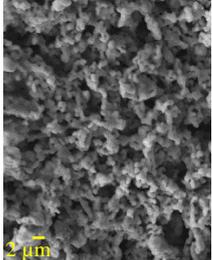
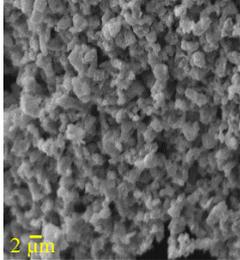
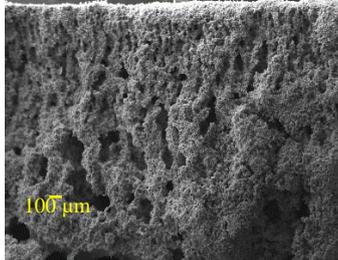
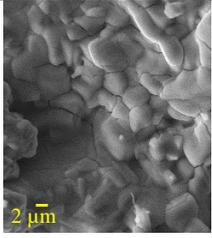
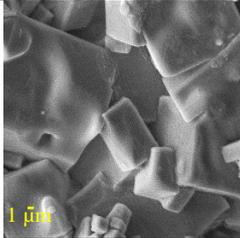
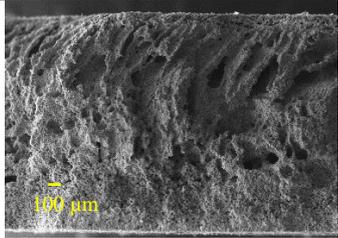
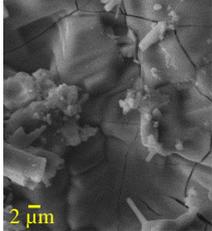
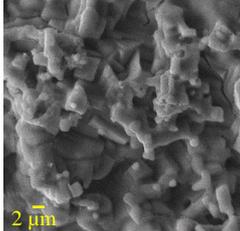
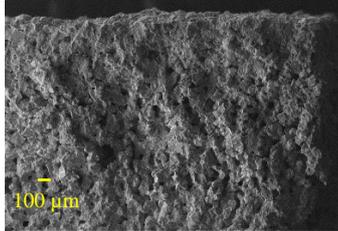
Tabel 4.2 Morfologi membran LSCF 7328

Aditif (% berat)		Permukaan bawah	Permukaan atas	Penampang lintang
PEG	H <sub>2</sub> O			
0	0			
3,5	1,5			
4	1			
4,5	0,5			
5	0			

Tabel 4.3 Morfologi membran mentah LSM 73

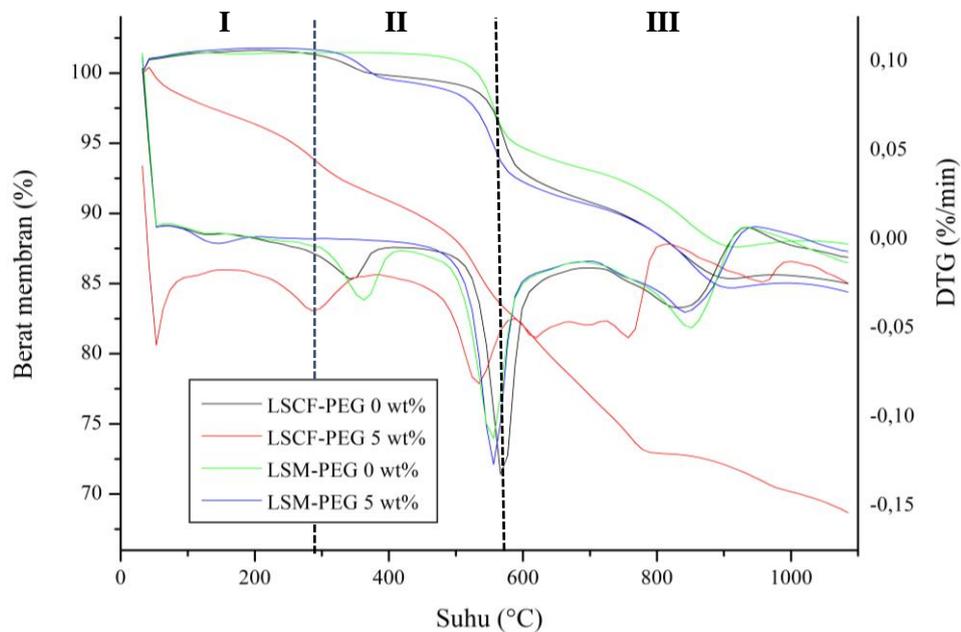
Aditif (% berat)		Permukaan bawah	Permukaan atas	Penampang lintang
PEG	H <sub>2</sub> O			
0	0			
3,5	1,5			
4	1			
4,5	0,5			
5	0			

Tabel 4.4 Morfologi membran LSM 73

Aditif (% berat)		Permukaan bawah	Permukaan atas	Penampang lintang
PEG	H <sub>2</sub> O			
0	0			
3,5	1,5			
4	1			
4,5	0,5			
5	0			

### 4.3 Hasil Analisis *Thermogravimetry* (TG)

Setelah difabrikasi, membran mentah yang masih mengandung PESf dikarakterisasi dengan TGA untuk mengamati dekomposisi PESf pada membran mentah. Gambar 4.6 menunjukkan hasil karakterisasi TGA dan DTG dari membran mentah LSCF 7328 dan LSM 73.



Gambar 4.6 Termogram membran mentah LSCF 7328 dan LSM 73

Pada Gambar 4.6, terdapat 3 zona penurunan berat membran. Zona pertama yaitu dari suhu kamar hingga 290°C, penurunan berat pada rentang suhu tersebut diakibatkan menguapnya air dan mulai terdekomposisinya PEG yang masih terkandung dalam membran. Jika dilihat dari Gambar 4.6, membran LSCF-PEG 5 % berat memiliki kandungan air yang lebih banyak dibandingkan membran lainnya. Selanjutnya, pada zona kedua yang memiliki rentang suhu antara 290-575°C. Terdapat dua kemungkinan yang menyebabkan penurunan berat pada rentang suhu tersebut : (i) dekomposisi PEG yang masih tertinggal pada membran dan (ii) terjadinya dekomposisi PESf. Menurut Setiawan dkk. (2016), PEG mulai terdekomposisi mulai suhu 200°C dan mengalami dekomposisi sempurna pada suhu 380°C. Selain itu, hal ini juga didukung oleh hasil penelitian Tan dkk (2005)

yang menunjukkan bahwa dekomposisi PESf secara sempurna terjadi pada suhu sekitar 550-600°C. Kemudian pada zona ketiga dengan rentang suhu 575-1100°C terdapat penurunan berat, hal ini dikarenakan pelepasan oksigen dari struktur kristal perovskit (reduksi termal). Analisis TG dilakukan pada atmosfer udara sehingga menyebabkan tekanan parsial oksigen yang rendah, perbedaan tekanan parsial oksigen menyebabkan oksigen yang berada pada kristal perovskit terlepas ke atmosfer/udara sehingga terjadi penurunan berat seperti reduksi termal perovskit berbasis titanat yang dilaporkan oleh Rodenbücher dkk. (2017). Kuantisasi kehilangan massa pada membran mentah ditunjukkan oleh Tabel 4.5.

Tabel 4.5 Kehilangan massa dari membran mentah pada suhu 450-600°C

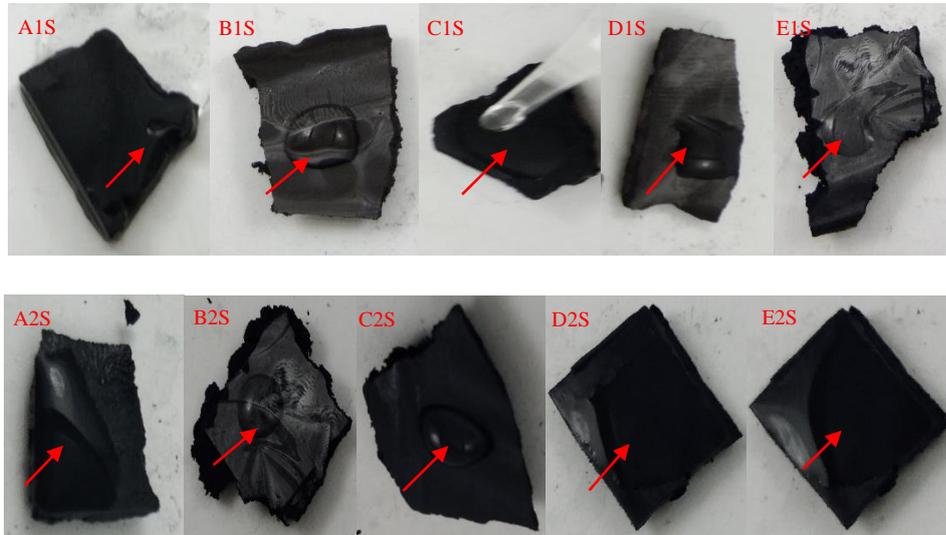
Membran	Massa yang hilang (%)
LSCF-PEG 0 % berat	8,967
LSCF-PEG 5 % berat	8,012
LSM-PEG 0 % berat	8,113
LSM-PEG 5 % berat	8,737

#### 4.4 Hasil Pengujian Kerapatan Membran dengan Metode Tetes Air

Metode pengujian kerapatan membran dengan tetes air merupakan cara yang sederhana untuk mengidentifikasi lapisan rapat yang terbentuk pada membran asimetris (Fansuri dkk., 2017), Gambar 4.7 menunjukkan hasil pengujian kerapatan membran dengan metode tetes air.

Pada Gambar 4.7, membran yang difabrikasi memiliki lapisan rapat yang dibuktikan dengan adanya air yang tidak menembus membran. Air tidak dapat menembus membran rapat karena molekul air yang lebih besar dibandingkan molekul gas, selain itu membran rapat mentransfer fasa umpan (*feed*) menuju sisi permeat melalui mekanisme *solution diffusion* dan banyak diaplikasikan untuk pemisahan gas, sedangkan air menembus membran melalui difusi pada pori-pori membran. Pada penelitian ini, air dapat menembus membran untuk beberapa sampel dari membran LSM 73. Hal ini menunjukkan kerapatan permukaan

membran LSM 73 masih rendah dikarenakan suhu sintering yang material LSM 73 lebih tinggi dibandingkan suhu sintering yang digunakan pada penelitian ini.



Gambar 4.7 Uji tetes air pada membran datar

Proses sintering meningkatkan kerapatan permukaan membran dan mempengaruhi kekuatan mekanik membran. Secara teoritis, semakin rapat partikel pada membran maka membran tersebut tidak dapat ditembus oleh air dan memiliki kekuatan mekanik yang lebih besar (Fansuri dkk., 2017). Membran berbasis material keramik membutuhkan proses sintering untuk meningkatkan kinerja membran pada proses fabrikasinya.

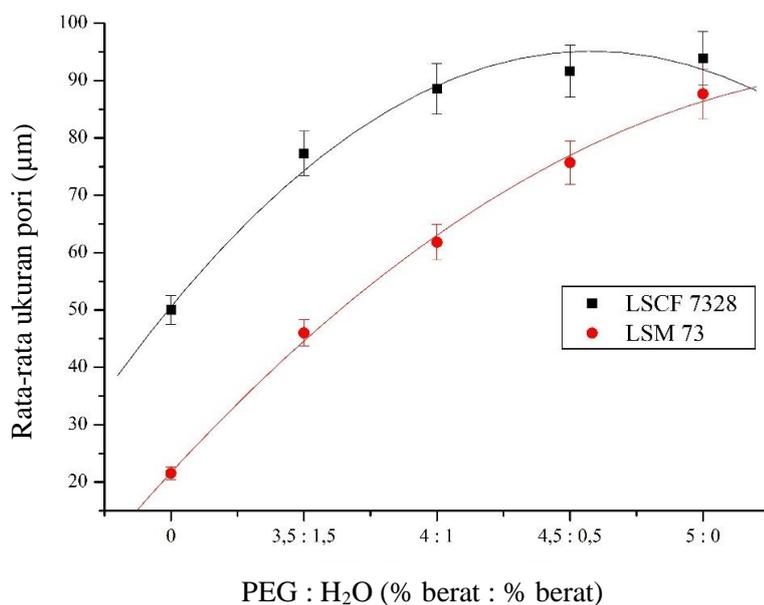
#### 4.5 Hasil Pengukuran Pori, Porositas dan Volume Pori Membran LSCF 7328 dan LSM 73

Pengukuran pori dilakukan pada foto SEM penampang lintang dari membran datar LSCF dan LSM yang sudah disintering. Gambar 4.8 menunjukkan hasil rata-rata ukuran pori membran.

Pada Gambar 4.8, ukuran pori membran LSM 73 secara umum lebih rendah dibandingkan membran LSCF 7328. Penambahan PEG dengan jumlah 5 % berat menghasilkan membran dengan ukuran pori sebesar 93,85 dan 87,69  $\mu\text{m}$  untuk masing-masing membran LSCF 7328 dan LSM 73, sedangkan membran yang dibuat tanpa penambahan aditif memiliki ukuran pori yang paling rendah baik untuk

membran LSCF 7328 dan LSM 73 dengan nilai ukuran pori masing-masing sebesar 50 dan 21,54  $\mu\text{m}$ , semakin besar jumlah PEG yang ditambahkan pada larutan *dope* maka semakin besar ukuran pori membran yang dihasilkan, pengamatan menggunakan SEM pada bagian penampang lintang menunjukkan peningkatan ukuran pori tersebut.

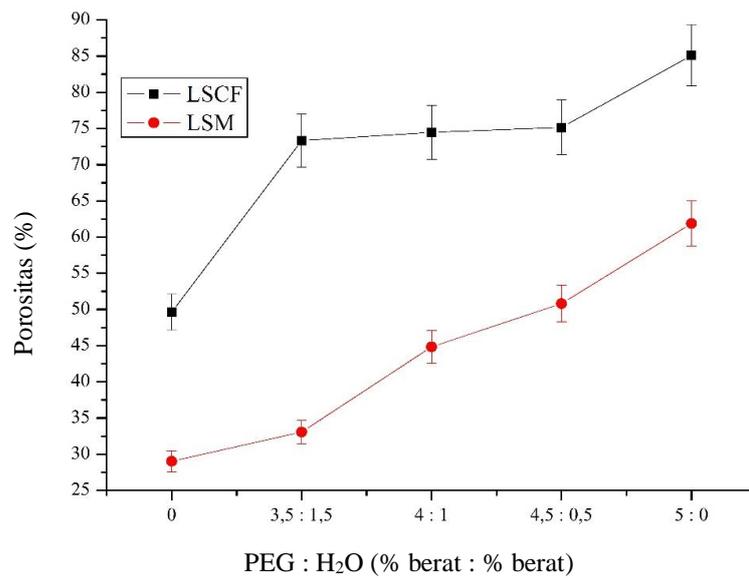
Setelah mengukur ukuran pori membran, pengukuran porositas dan volume pori membran dilakukan dengan metode adsorpsi cairan. Membran dipotong dengan ukuran 1 x 1 cm dan direndam kedalam air panas (suhu kurang lebih  $100^{\circ}\text{C}$ ) selama 20-30 menit. Penggunaan air panas pada pengukuran porositas dan volume pori bertujuan untuk menurunkan tegangan permukaan pada pori-pori membran, sehingga air tersebut dapat mengisi pori membran dengan sempurna. Hasil kalkulasi porositas dan volume pori dilakukan terhadap variasi rasio PEG dan  $\text{H}_2\text{O}$  ditunjukkan oleh Gambar 4.9 dan Gambar 4.10



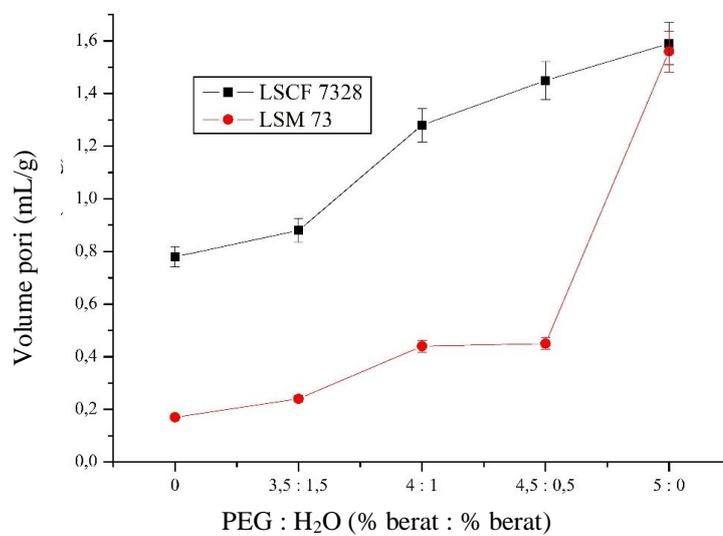
Gambar 4.8 Ukuran pori membran

Pada Gambar 4.9 dan Gambar 4.10, porositas dan volume pori memiliki pola kenaikan yang sama yaitu volume pori meningkat seiring meningkatnya nilai porositas membran. Penggunaan PEG 5% menghasilkan membran dengan porositas dan volume pori yang paling besar pada masing-masing membran baik

LSCF 7328 maupun LSM 73, hal ini didukung oleh penelitian yang dilakukan oleh Saljoughi dkk (2009) yang menyatakan bahwa semakin besar penggunaan aditif dalam larutan *dope* akan menghasilkan membran dengan porositas yang semakin besar. Selain jumlah *loading* aditif pada larutan *dope*, berat molekul dari PEG juga mempengaruhi ukuran pori yang terbentuk. Semakin besar berat molekul PEG maka semakin besar juga ukuran pori membran dan hal ini akan berpengaruh terhadap sifat mekanik dan kinerja membran.



Gambar 4.9 Porositas membran LSCF 7328 dan LSM 73



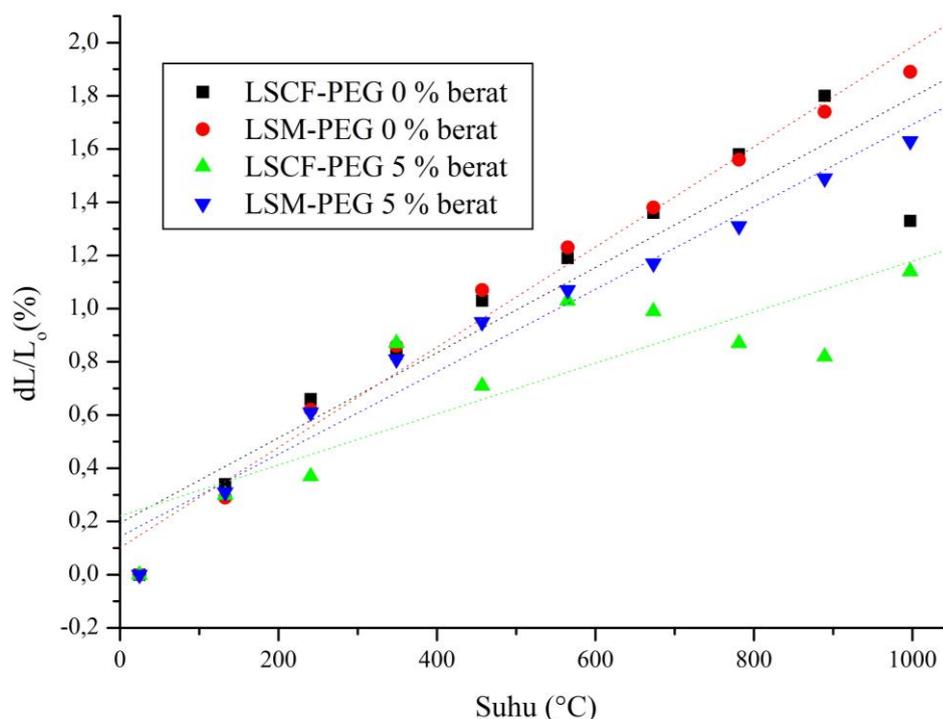
Gambar 4.10 Volume pori membran LSCF 7328 dan LSM 73

Penambahan PEG dengan jumlah 5 % berat menghasilkan membran dengan porositas mencapai 85,1 % dan volume pori sebesar 1,59 mL/g untuk membran LSCF 7328, sedangkan untuk membran LSM 73 dengan jumlah aditif yang sama menghasilkan membran dengan porositas mencapai 61,88 % dan volume pori sebesar 1,56 mL/g. Membran yang dibuat tanpa penambahan aditif pada larutan *dope* memiliki porositas dan volume pori yang paling rendah baik pada membran LSCF 7328 maupun LSM 73. Membran LSCF 7328 tanpa penambahan aditif memiliki nilai porositas sebesar 49,63 % dan volume pori sebesar 0,78 mL/g. Jika dibandingkan dengan membran LSM 73, nilai porositas dan volume pori membran LSCF 7328 tanpa penambahan aditif masih lebih besar dikarenakan nilai porositas membran LSM 73 tanpa aditif hanya 29,03% dengan volume pori sebesar 0,24 mL/g. Membran yang dibuat tanpa penambahan PEG memiliki nilai porositas dan volume pori yang rendah jika dibandingkan dengan membran yang dibuat dengan penambahan PEG, sedangkan penambahan air pada larutan *dope* mengurangi porositas membran, jumlah *loading* PEG berkurang dan digantikan oleh air, berdasarkan penelitian Mohamed dkk. (2016) menunjukkan bahwa penambahan nonpelarut kedalam larutan *dope* akan meningkatkan viskositas larutan *dope*, dimana hal ini akan mengurangi ukuran *finger like* dan menambah ketebalan lapisan rapat dari membran akibat terjadinya perlambatan pepadatan dari larutan *dope*.

#### **4.6 Pengujian Koefisien Ekspansi Termal dengan *Thermomechanical Analyzer* (TMA)**

Pola pemuaian membran LSCF 7328 dan LSM 73 ditunjukkan oleh Gambar 4.11, pemuaian yang paling tinggi dialami oleh LSCF 7328 dan LSM 73 tanpa penambahan aditif, sedangkan membran yang dibuat dengan penambahan aditif memiliki nilai pemuaian yang lebih rendah dibandingkan membran yang dibuat tanpa penambahan aditif. Fenomena pemuaian membran LSCF 7328 dan LSM 73 dipengaruhi oleh kerapatan antar partikel membran, penambahan aditif hingga mencapai 5 % berat mengakibatkan penurunan pemuaian panas pada rentang suhu 400-1000°C. Munculnya pori pada membran menurunkan kerapatan antar partikel dikarenakan ada beberapa bagian pada membran yang tidak saling terhubung akibat adanya rongga kosong yang disebabkan difusi pelarut-nonpelarut dan PEG.

Sedangkan berdasarkan data SEM, ukuran pori, volume pori dan porositas, membran yang difabrikasi tanpa penambahan aditif memiliki lapisan rapat yang lebih tebal, ukuran pori dan porositas yang lebih kecil. Selain mendapatkan informasi mengenai pola pemuaian pada rentang suhu yang ditentukan, nilai koefisien muai panas (*Thermal Expansion Coefficient*) juga dapat dianalisis dengan TMA. Tabel 4.6 menunjukkan nilai koefisien muai panas dari keempat membran yang dikarakterisasi.



Gambar 4.11 Kurva pemuaian membran LSCF 7328 dan LSM 73

Huang dkk (2010) menjelaskan bahwa terdapat faktor-faktor yang menyebabkan kenaikan pola pemuaian, seperti : (i) gaya tolakan antar kation yang berdekatan (baik situs A atau B pada perovskit) akibat adanya pelepasan oksigen dari kisi kristal dan (ii) kekosongan oksigen menyebabkan terjadinya reduksi pada ion logam transisi secara spontan yang bertujuan untuk menjaga kestabilan struktur perovskit. Pelepasan oksigen meningkat pada suhu tinggi dan mengakibatkan proses reduksinya juga meningkat, pada rentang suhu 400-600°C terjadi reduksi  $\text{Co}^{4+}$  (0,530 Å) menjadi  $\text{Co}^{3+}$  (0,610 Å) dan  $\text{Fe}^{4+}$  (0,585 Å) menjadi  $\text{Fe}^{3+}$  (0,645 Å). Sedangkan pada suhu 750-1000°C terjadi reduksi dari  $\text{Co}^{3+}$  (0,610 Å) menjadi  $\text{Co}^{2+}$

(0,745 Å) (Babakhani dkk., 2011). Reduksi ini menyebabkan jari-jari ion pada situs B perovskit membesar sehingga hal ini yang menghasilkan pola pemuai yang meningkat untuk membran LSCF 7328 dan LSM 73 pada suhu yang semakin tinggi.

Tabel 4.6 Nilai Koefisien Muai Panas dari Membran LSCF 7328 dan LSM 73

Suhu (°C)	Koefisien Muai Panas (ppm.°C <sup>-1</sup> )			
	LSCF-PEG 0 % berat	LSM-PEG 0 % berat	LSCF-PEG 5 % berat	LSM-PEG 5 % berat
24,72	-9,93	-1,58	-91,19	1,25
132,79	31,5	27,34	27,86	21,63
240,86	30,73	28,57	-17,05	2,45
348,93	25,62	26,7	-26,77	9,85
457	23,82	24,73	-16,45	2,41
565,06	22,09	22,88	-19,06	16,36
673,13	20,9	21,37	-15,3	9,32
781,2	20,89	20,63	-11,48	5,87
889,27	20,84	20,11	-9,57	11,26
997,34	13,7	19,44	-11,75	30,65
<b>25-1000</b>	<b>20,02</b>	<b>21,02</b>	<b>-19,08</b>	<b>11,11</b>

#### 4.7 Hasil Pengujian Kekerasan Membran dengan Microhardness Vickers

Sifat mekanik membran salah satunya ditunjukkan dari nilai kekerasan, semakin tinggi nilai kekerasan suatu material menunjukkan bahwa sifat mekanik material tersebut semakin besar. Kekerasan membran LSCF 7328 dan LSM 73 diuji menggunakan *Microhardness Vickers* dengan gaya tekan yang digunakan sebesar 0,01 kgF dan lama indentasi yaitu 4 detik. Gambar 4.12 menunjukkan kekerasan dari membran LSCF 7328 dan LSM 73.

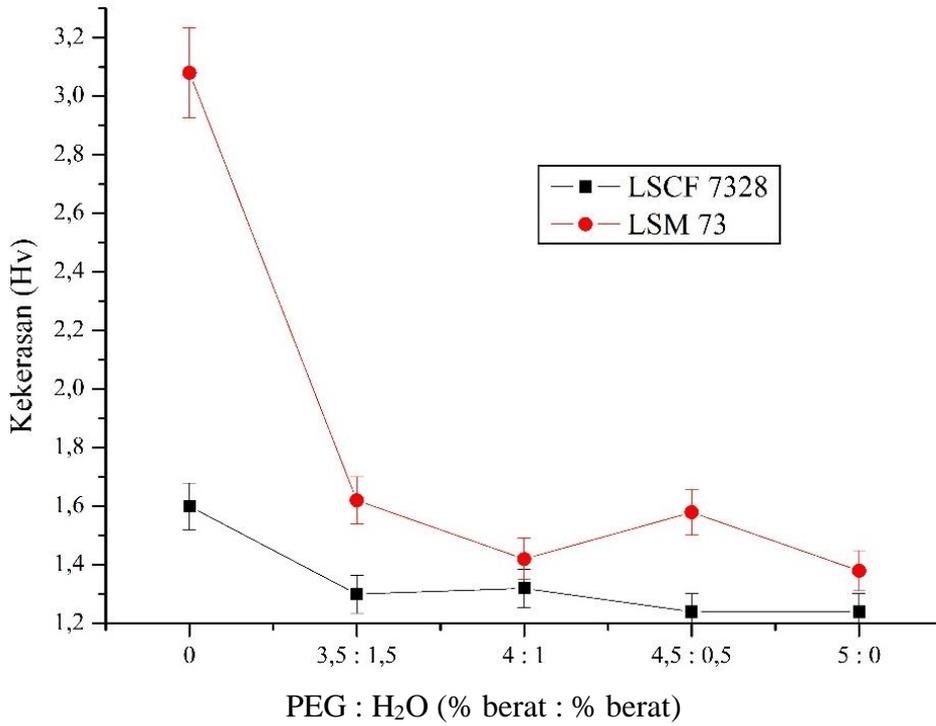
Membran LSCF 7328 memiliki kekuatan mekanik yang lebih rendah dibandingkan membran LSM 73. Data kekerasan ini didukung oleh informasi mengenai pori membran pada foto SEM dan nilai porositasnya. Membran LSCF 7328 memiliki kekerasan yang berkisar dari 1,24 hingga 1,6 Hv. Nilai tersebut tidak terlalu jauh berbeda antara satu membran dengan membran lainnya. Penambahan

aditif PEG dan air dengan komposisi tersebut memiliki pengaruh yang tidak terlalu besar terhadap perubahan kekuatan mekanik membran, sedangkan pada membran LSM 73 memiliki nilai kekerasan yang berkisar antara 1,38 hingga 3,08 Hv. Jika dibandingkan dengan penelitian sebelumnya mengenai kekerasan membran perovskit, Habib dkk. (2017) melaporkan bahwa penambahan PEG sebesar 0,03 – 0,07 % berat pada larutan *dope* menghasilkan membran dengan nilai kekerasan mencapai 400 Hv, sedangkan jika dibandingkan dengan penelitian ini yang menggunakan aditif sebanyak 5 % berat dengan berbagai variasi konsentrasi PEG dan H<sub>2</sub>O menghasilkan membran dengan nilai kekerasan pada kisaran 1,24 – 1,6 Hv dan 1,38 – 3,08 Hv untuk masing-masing membran LSCF 7328 dan LSM 73. Hal ini menunjukkan bahwa semakin besar penambahan aditif akan menurunkan nilai kekerasan dan sifat mekanik membran, sebaliknya semakin kecil jumlah aditif yang ditambahkan pada larutan *dope* maka semakin kecil juga nilai kekerasannya. Menurunnya nilai kekerasan membran pada konsentrasi PEG yang semakin besar disebabkan pori membran yang semakin besar. Membran dengan ukuran pori yang semakin besar tidak cukup kuat menahan indentasi, sehingga luas area dari bekas indentasi semakin besar yang menunjukkan bahwa kekerasan membran semakin kecil.

Tan dkk (2011) menjelaskan hal-hal yang mempengaruhi kekuatan mekanik membran. Selain pemilihan material membran, struktur membran juga berpengaruh terhadap sifat mekanik membran. Struktur membran yang dimaksud meliputi struktur pori (*finger like* atau *sponge like*), ukuran pori dan lapisan rapat pada membran.

Penelitian ini fokus pada pengaruh aditif terhadap pembentukan pori membran. Semakin banyak jumlah PEG yang ditambahkan pada larutan *dope* maka kekuatan mekanik dari membran semakin menurun, baik pada membran LSCF 7328 maupun LSM 73. Pada Gambar 4.12 terjadi fluktuasi nilai kekerasan pada membran LSCF 7328 dengan penambahan PEG 4,5 dan 5 % berat. Jika ditinjau dari morfologi penampang lintang, membran LSM dengan penambahan PEG 4,5 % berat memiliki ketebalan lapisan rapat yang lebih tinggi, sehingga fluktuasi nilai

kekerasan disebabkan oleh ketebalan lapisan rapat, karena semakin tebal lapisan rapat maka membran tersebut semakin kuat menahan indentasi.



Gambar 4.12 Kekerasan membran LSCF 7328 dan LSM 73

#### 4.8 Hasil Pengukuran Fluks Oksigen Membran Datar LSCF 7328

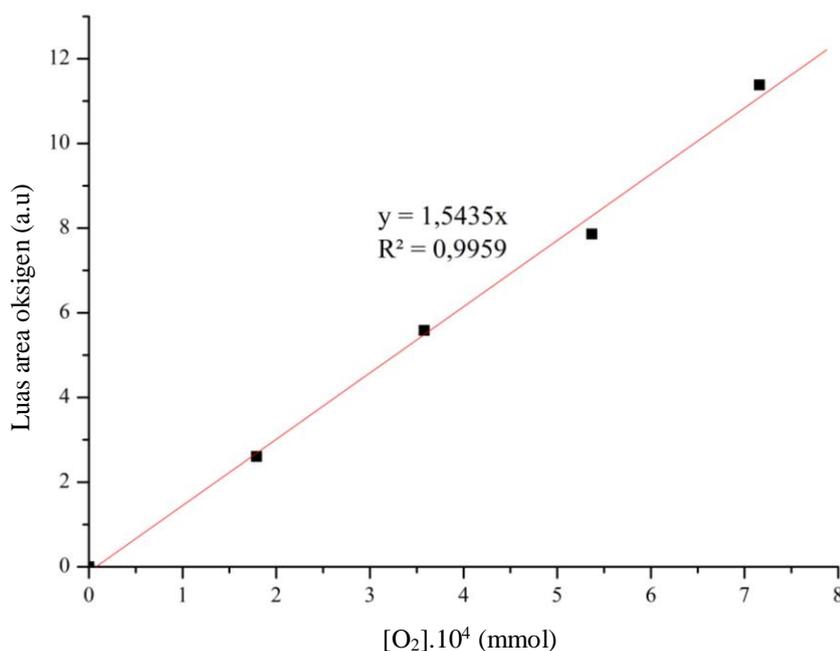
Fluks oksigen sangat berkaitan erat dengan kemampuan membran dalam memisahkan dan menghantarkan oksigen. Semakin tinggi nilai fluks oksigen maka permeabilitas oksigen semakin meningkat. Metode pengujian fluks oksigen sudah dipaparkan pada subbab 3.28 dan skema reaktor ditunjukkan pada Gambar 3.2. Skema reaktor yang digunakan pada penelitian ini memiliki prinsip yang sama dengan reaktor yang digunakan oleh Utomo dkk (2014). Membran LSCF 7328 ditempelkan pada pipa yang memiliki diameter 0,75 cm, kemudian membran tersebut disegel (*sealed*) menggunakan pasta perak (*silver paste*) dan dilapisi lem keramik. Proses penyegelan melalui kombinasi pasta perak dan lem keramik diharapkan mampu mengurangi resiko kebocoran pada suhu 700°C. Pengukuran oksigen yang melewati penyegel dilakukan dengan mengalirkan gas helium dari sisi umpan dan sisi permeat pada temperatur operasi yang sama, lalu hasil

pengukuran tersebut dianggap sebagai *baseline*. Kemudian, nilai konsentrasi oksigen pada gas permeat digunakan untuk menghitung fluks oksigen dari membran dengan mengikuti persamaan 3.5. Gas permeat (gas oksigen) kemudian dianalisis menggunakan *Gas Chromatography Buck Scientific* yang dilengkapi dengan kolom *Molecular Sieve* dan *Thermal Conductivity Detector* (TCD). Selain itu, pada sisi permeat juga dialirkan gas helium dengan laju alir 30 mL/menit, laju alir tersebut diatur menggunakan *Mass Flow Controlled* (MFC) dan *compressed air* pada sisi umpan diatur dengan laju alir sebesar 150 mL/menit.

Gambar 4.13 menunjukkan kurva standart oksigen, persamaan  $y = 1,5435x$  dengan nilai regresi linear = 0,9959 digunakan untuk menentukan mol oksigen pada gas permeat, dimana  $y$  merupakan luas area dan  $x$  adalah mol oksigen serta kedua parameter tersebut memiliki hubungan yang linear. Artinya, setiap peningkatan mol oksigen diikuti oleh peningkatan luas area. Jika nilai regresi linear berada pada rentang 0,9 – 1, maka hubungan kedua parameter tersebut adalah korelasi positif sempurna.

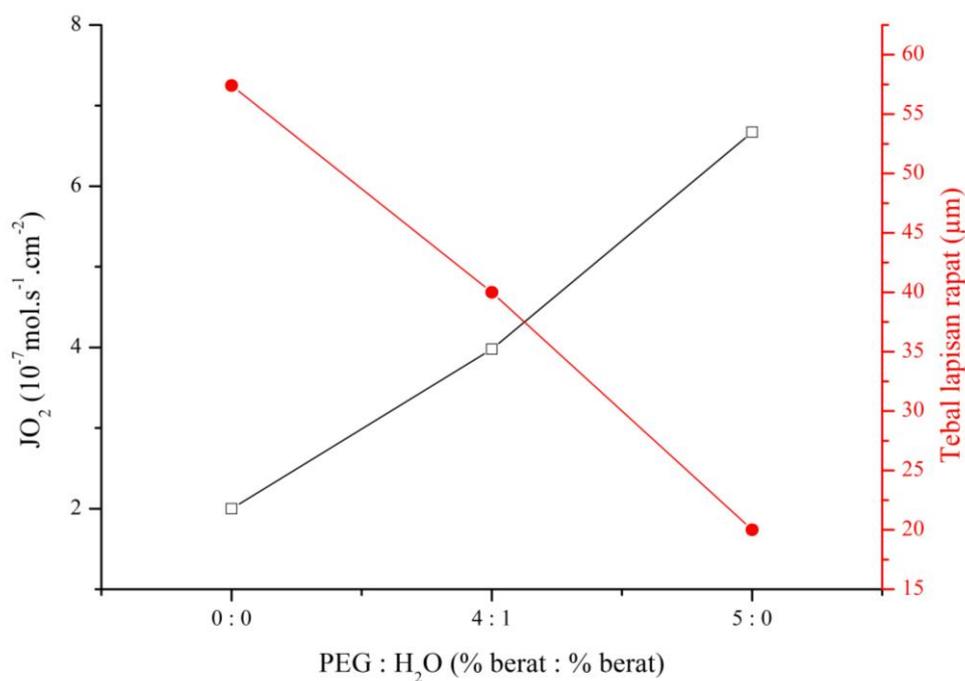
Pengukuran fluks oksigen dilakukan pada suhu 700°C, ketiga membran yang diuji memiliki ukuran pori yang berbeda seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 4.8 dan hasil pengukuran fluks oksigen membran LSCF 7328 ditunjukkan oleh Gambar 4.14. Ukuran pori berpengaruh terhadap nilai fluks permeasi oksigen membran LSCF 7328. Membran LSCF 7328 yang difabrikasi tanpa penambahan aditif memiliki nilai fluks permeasi oksigen terendah yakni sebesar  $2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  dengan tebal lapisan rapat sebesar 57,4  $\mu\text{m}$ , selanjutnya membran LSCF 7328 dengan rasio PEG : H<sub>2</sub>O = 4 % berat : 1 % berat memiliki tebal lapisan rapat sebesar 40  $\mu\text{m}$  dan nilai fluks oksigen sebesar  $3,98 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  dan membran LSCF 7328 dengan rasio PEG : H<sub>2</sub>O = 5 % berat : 0 % berat memiliki tebal lapisan rapat tertipis yaitu 20  $\mu\text{m}$  dengan nilai fluks oksigen sebesar  $6,67 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Nilai tersebut lebih besar jika dibandingkan dengan penelitian sebelumnya yang dilaporkan oleh Sunarso dkk (2008). Sunarso dkk melaporkan bahwa La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>FeO<sub>3</sub>, La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>FeO<sub>3</sub> dan beberapa material lainnya diuji pada suhu 1000°C dan menghasilkan nilai fluks berkisar antara  $1 \cdot 10^{-7}$ - $2,612 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  yang secara detail telah dipaparkan pada Tabel 2.1. Berdasarkan hasil tersebut,

penambahan aditif pada larutan *dope* meningkatkan kinerja membran perovskit untuk menghantarkan oksigen, hal ini disebabkan ukuran pori yang membesar dan lapisan rapat yang menipis akibat adanya difusi aditif.



Gambar 4.13 Kurva standart

Tan dkk. (2011) menjelaskan bahwa struktur membran (morfologi) mempengaruhi kinerja membran dalam menghantarkan oksigen, semakin tebal lapisan rapat dan semakin kecil ukuran pori membran maka menurunkan fluks permeasi oksigen dikarenakan jarak yang ditempuh oksigen pada saat melewati membran semakin panjang, penambahan aditif pada larutan *dope* ternyata meningkatkan ukuran pori secara signifikan, sehingga kinerja membran LSCF 7328 yang digunakan pada penelitian ini meningkat seiring bertambahnya jumlah PEG. Semakin besar jumlah PEG maka semakin besar ukuran pori membran dan lapisan rapat membran akan menipis, sehingga gas oksigen dari sisi umpan akan dengan mudah melewati membran. Oksigen melewati membran melalui mekanisme *solution diffusion* dikarenakan adanya kekosongan oksigen pada struktur kristal LSCF 7328 dan LSM 73. Selain itu, hal-hal lain yang berpengaruh terhadap nilai fluks permeasi membran yaitu pemilihan material, temperatur operasi dan laju alir gas penyapu (*sweep gas*).



Gambar 4.14 Fluks oksigen membran datar LSCF 7328 pada suhu 700°C

#### 4.9 Fabrikasi, Karakterisasi dan Pengukuran Fluks Oksigen Membran *Hollow Fiber* LSCF 7328

Fabrikasi membran *hollow fiber* berhasil dilakukan dengan metode inversi fasa dengan teknik ko-ekstrusi dan diikuti proses sintering. Sebelum larutan dope dicetak menjadi membran, larutan tersebut diukur viskositasnya menggunakan viskometer. Hasil pengukuran larutan dope ditunjukkan oleh Tabel 4.7.

Tabel 4.7 Viskositas larutan *dope*

PEG loading (% berat)	Viskositas (cP)
3	2450
5	4860

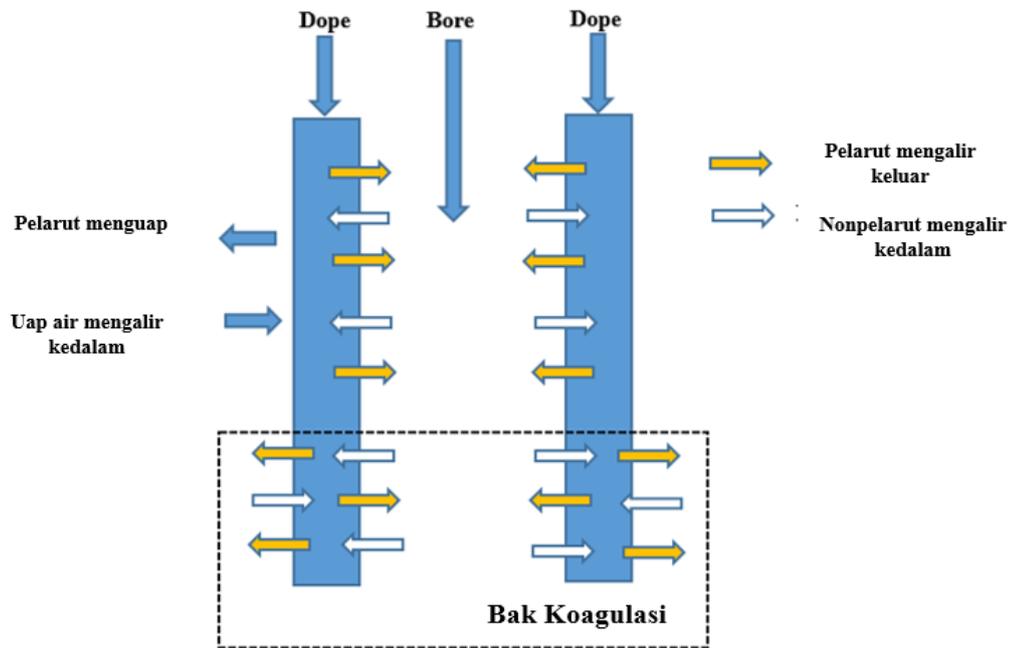
Pada Tabel 4.7, penambahan PEG pada larutan *dope* meningkatkan viskositas larutan dan mempercepat proses pengendapan. Penambahan PEG sebesar 3 % berat memiliki nilai viskositas sebesar 2450 cP dan penambahan PEG sebesar 5 % berat menghasilkan nilai viskositas sebesar 4860 cP. Pertukaran

pelarut-nonpelarut semakin cepat apabila viskositas larutan *dope* semakin tinggi. Secara teoritis, penambahan PEG aditif pada larutan *dope* mempengaruhi struktur atau morfologi membran. Faktor lain yang menentukan morfologi membran yaitu pemilihan polimer binder, pelarut-nonpelarut, komposisi larutan *dope/bore*/koagulan eksternal, suhu sintering dan suhu bak koagulan (Mulder, 1996). Pembentukan pori pada membran disebabkan oleh pertukaran pelarut-nonpelarut dan aditif berfungsi untuk memperbesar ukuran pori. Menurut Mulder (1996), jika laju difusi nonpelarut lebih cepat dibandingkan pelarut maka menghasilkan membran dengan pori *finger like*, sedangkan jika laju difusi nonpelarut sama dengan laju difusi pelarut maka membran yang dihasilkan memiliki pori dengan struktur *sponge like*. Mekanisme pembentukan pori pada membran *hollow fiber* ditunjukkan oleh Gambar 4.15.

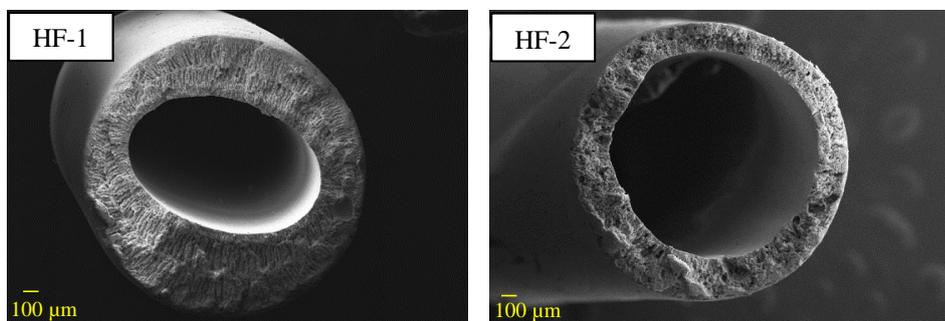
Penampang lintang (*full cross section*) membran *hollow fiber* ditunjukkan oleh Gambar 4.16, membran yang dibuat dengan penambahan PEG sebesar 3 % berat memiliki pori *finger like* dan pori yang seragam jika dibandingkan membran yang dibuat dengan penambahan PEG sebesar 5 % berat. Selain itu, terdapat lapisan rapat yang tipis dibagian tengah (diantara lapisan berpori). Pengamatan lain untuk membran sebelum dan setelah sintering pada bagian permukaan dalam, permukaan luar dan setengah atau seperempat dari penampang lintang (*half cross section*) juga dilakukan menggunakan SEM. Hasil pengamatan tersebut ditunjukkan oleh Gambar 4.17 dan Gambar 4.18.

Membran setelah sintering ditulis dengan kode HF-1S dan HF-2S, pada permukaan luar dan dalam masing-masing membran terdapat pori-pori dengan ukuran yang kecil dan persebaran yang tidak merata. Munculnya pori pada permukaan membran diakibatkan difusi pelarut-nonpelarut dan difusi PEG dari larutan *dope* ke nonpelarut pada saat proses inversi fasa yang dikombinasi dengan teknik pengendapan terendam. Setelah proses sintering, membran HF-1S tetap memiliki struktur pori *finger like*, hal ini menunjukkan bahwa proses sintering tidak merubah struktur pori, tetapi memungkinkan untuk mengurangi ukuran pori akibat proses densifikasi partikel, sedangkan pada membran HF-2S terdapat pori dengan struktur *finger like* pada bagian penampang lintang, namun pada bagian tengah dari

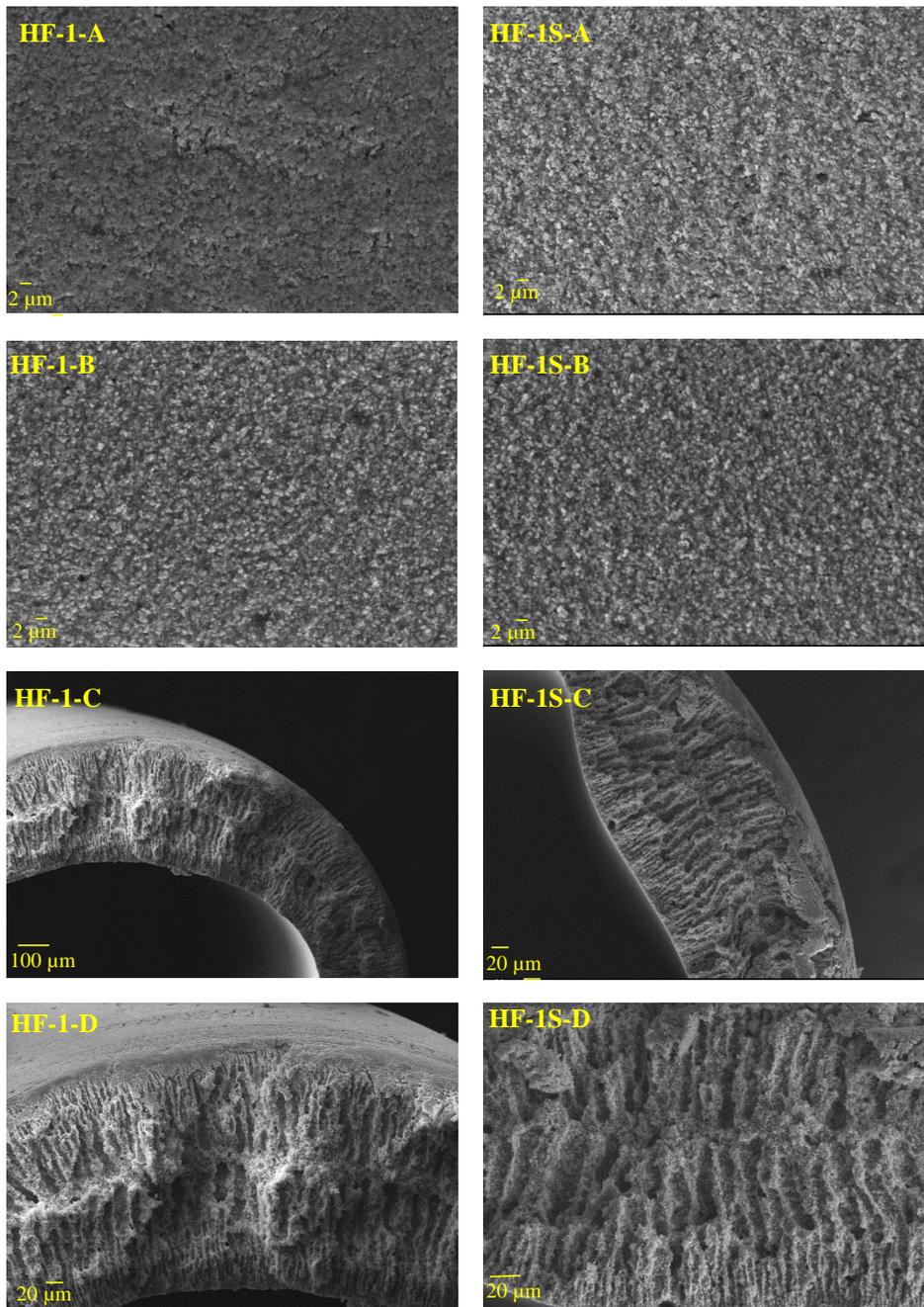
penampang lintang membran terdapat pori-pori yang tidak teratur. Hal ini dapat disebabkan PEG dalam jumlah yang besar dengan ketebalan membran yang tipis tidak dapat berdifusi secara sempurna sehingga masih terdapat PEG yang tertinggal pada membran, pada saat proses sintering PEG tersebut akan berubah menjadi CO<sub>2</sub> dan uap air akibat proses pemanasan.



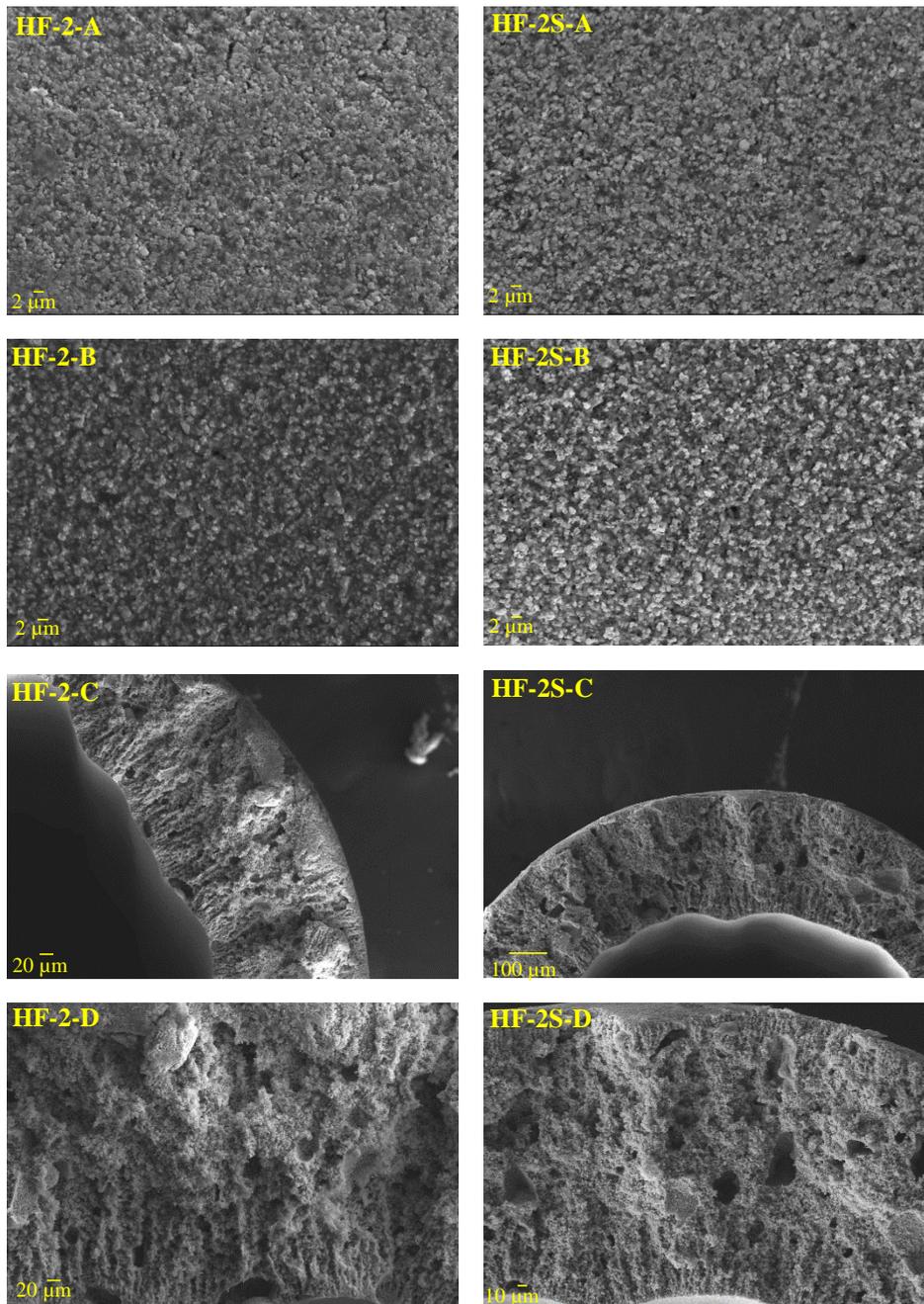
Gambar 4.15 Mekanisme pertukaran pelarut-nonpelarut



Gambar 4.16 Penampang lintang membran *Hollow Fiber* LSCF 7328



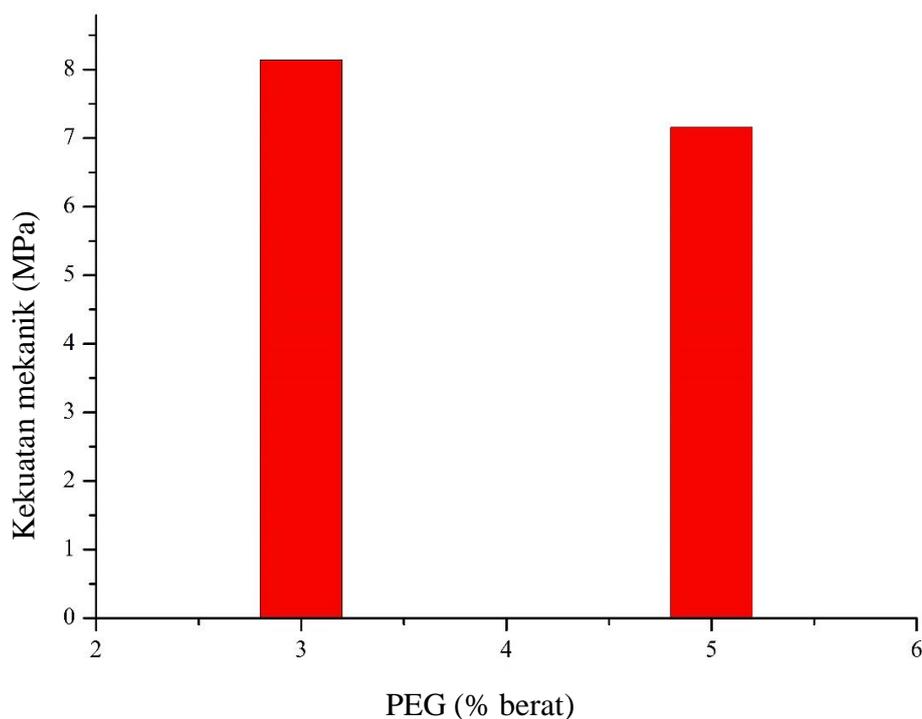
Gambar 4.17 Foto SEM Membran *Hollow Fiber* dengan PEG 3 % berat :  
 (a) Permukaan luar, (b) Permukaan dalam, (c) Penampang lintang  
 dan (d) Penampang lintang dengan perbesaran yang lebih tinggi



Gambar 4.18 Foto SEM Membran *Hollow Fiber* dengan PEG 5 % berat :  
 (a) Permukaan luar, (b) Permukaan dalam, (c) Penampang lintang  
 dan (d) Penampang lintang dengan perbesaran yang lebih tinggi

Parameter lain yang penting mengenai sifat fisik membran yaitu kekuatan mekanik, kekuatan mekanik membran diuji menggunakan *3-Point Bending*. Hasil pengujian kekuatan mekanik ditunjukkan oleh Gambar 4.19. Penambahan PEG 3 dan 5 % berat masing-masing menghasilkan membran dengan kekuatan mekanik

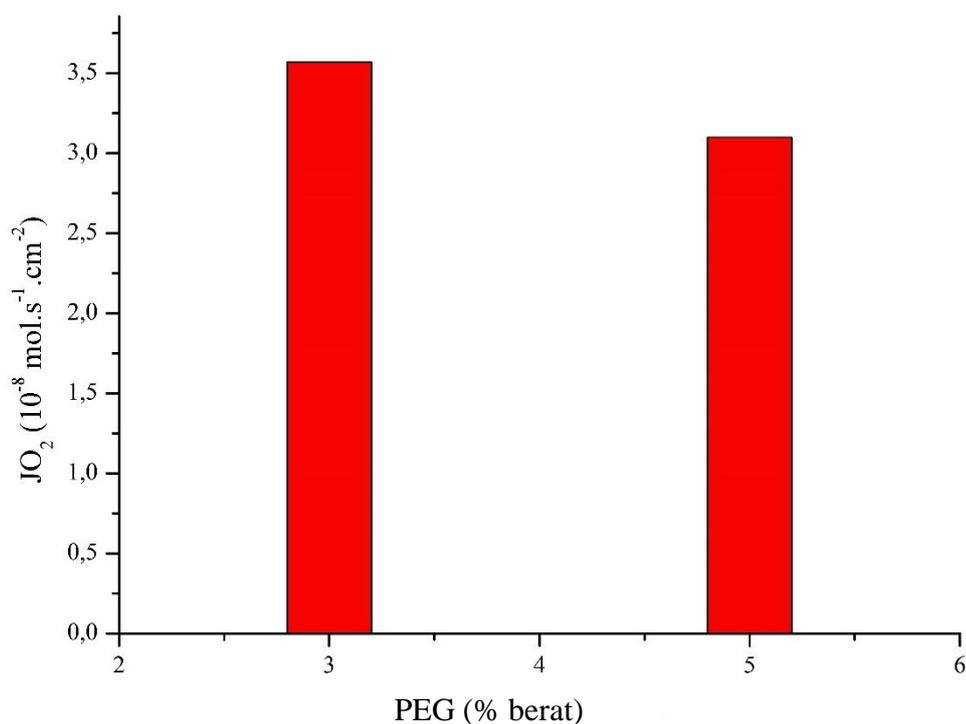
sebesar 8,1 dan 6,7 MPa. Jika dibandingkan penelitian sebelumnya, membran tersebut memiliki kekuatan mekanik yang lebih rendah dibandingkan penelitian Tan dkk. Tan dkk (2010) memfabrikasi membran *hollow fiber* dengan aditif PVP sebesar 3,71 % berat dan menghasilkan membran dengan kekuatan mekanik sebesar 154 MPa. Perbedaan kekuatan mekanik yang jauh antara penelitian ini dan Tan dkk disebabkan oleh sifat dari polimer aditif dan berat molekul polimer. Secara teoritis, berat molekul polimer yang semakin besar akan menghasilkan membran dengan ukuran pori yang besar dan kekuatan mekanik yang rendah. Selain itu, jumlah *loading* PEG pada larutan *dope* juga berpengaruh terhadap sifat fisik membran. Semakin besar *loading* PEG menyebabkan kekuatan mekanik membran menurun. Menurut Tan dkk (2011), selain struktur dan morfologi membran, pemilihan material membran dan profil sintering berpengaruh terhadap kekuatan mekanik membran.



Gambar 4.19 Kekuatan mekanik membran *hollow fiber* LSCF 7328

Selain kekuatan mekanik, parameter penting mengenai kemampuan membran dalam menghantarkan oksigen adalah fluks oksigen. Fluks oksigen membran *hollow fiber* LSCF 7328 diukur menggunakan metode yang sama dengan

membran datar seperti yang dipaparkan pada subbab 3.2.8. Pada pengukuran membran *hollow fiber* juga terdapat kebocoran yang sama seperti pengukuran fluks oksigen pada membran datar. Gambar 4.20 menunjukkan fluks oksigen membran *hollow fiber* 7328 dengan penambahan jumlah PEG yang berbeda. Nilai kedua fluks tidak jauh berbeda yakni  $3,57 \cdot 10^{-8} \text{ mol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  untuk penambahan PEG sebesar 3 % berat dan  $3,1 \cdot 10^{-8} \text{ mol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  untuk penambahan PEG sebesar 5 % berat. Nilai fluks tersebut masih lebih rendah jika dibandingkan penelitian yang dibandingkan oleh Tan dkk (2011) dan Sunarso dkk (2008). Hal ini disebabkan perbedaan susunan reaktor yang digunakan untuk mengukur nilai fluks tersebut. Pada umumnya, sistem reaktor *cross flow* digunakan untuk mengukur nilai fluks oksigen dari membran *hollow fiber*. Namun, pada penelitian ini menggunakan sistem reaktor *dead end* yang sama digunakan untuk mengukur membran datar.



Gambar 4.20 Fluks oksigen membran *hollow fiber* LSCF 7328 pada suhu  $700^\circ\text{C}$

*\*Halaman ini sengaja dikosongkan\**

## **BAB V**

### **PENUTUP**

#### **5.1 Kesimpulan**

Berdasarkan data-data dan pembahasan yang telah dipaparkan pada bab sebelumnya dapat disimpulkan bahwa penambahan PEG memainkan peranan penting untuk meningkatkan ukuran pori. Hal tersebut dibuktikan dengan penambahan PEG mencapai 5 % berat pada membran LSCF 7328 atau LSM 73 meningkatkan ukuran pori membran dan nilai dari parameter-parameter lainnya pun meningkat seperti porositas dan volume pori. Selain itu, berdasarkan gambar SEM yang menunjukkan secara umum membran yang dihasilkan memiliki struktur *finger like* dan memiliki lapisan rapat. Hal yang sama juga berlaku untuk membran *hollow fiber*, semakin besar penambahan PEG maka membran *hollow fiber* yang dihasilkan semakin berpori. Disisi lain, peningkatan ukuran pori menyebabkan penurunan nilai kekerasan atau kekuatan mekanik dari membran, hal ini dikarenakan rongga kosong yang besar pada membran tidak cukup kuat menahan indentasi dari *microhardness vickers* untuk membran datar asimetris.

Karakterisasi TMA pada membran menunjukkan bahwa membran yang semakin berpori memiliki pola pemuaian dan nilai koefisien ekspansi termal yang lebih rendah dibandingkan membran yang dibuat tanpa penambahan aditif. Selain itu, pengukuran fluks oksigen membran datar LSCF 7328 tanpa aditif, LSCF 7328 dengan PEG : H<sub>2</sub>O = 4 % berat : 1 % berat dan LSCF 7328 dengan PEG : H<sub>2</sub>O = 5 % berat : 0 % berat memiliki nilai masing-masing  $11,957 \cdot 10^{-7}$ ;  $23,778 \cdot 10^{-7}$  dan  $40,406 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ , sedangkan untuk membran *hollow fiber* dengan penambahan PEG 3 dan 5 % berat memiliki nilai fluks oksigen masing-masing sebesar  $3,57 \cdot 10^{-8}$  dan  $3,51 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

#### **5.2 Saran**

Proses penyegelan harus diperhatikan lebih teliti dikarenakan rentan terjadi resiko kebocoran reaktor akibat perbedaan koefisien ekspansi termal antara membran dan lem yang digunakan.

*\*Halaman ini sengaja dikosongkan\**

## DAFTAR PUSTAKA

- Alain, I., Schneider, J., Bigerelle, M., & Iost, A. (1999). Statistical Analysis of the Vickers Hardness Statistical analysis of the Vickers hardness. *Materials Science & Engineering*, 5093(April 1999), 256–263.
- Arthanareeswaran, G., Devi, T. K. S., & Mohan, D. (2009). Development , characterization and separation performance of organic – inorganic membranes Part II . Effect of additives. *Separation and Purification Technology*, 67, 271–281.
- Athayde, D. D., Souza, D. F., Silva, A. M. A., Vasconcelos, D., Nunes, E. H. M., Diniz, J. C., & Vasconcelos, W. L. (2016). Review of perovskite ceramic synthesis and membrane preparation methods. *Ceramics International*, 42(6), 6555–6571.
- Babakhani, E. G., Towfighi, J., & Nazari, K. (2010). Synthesis of BSCFO Ceramics Membrane Using a Simple Complexing Method and Experimental Study of Sintering Parameters. *Journal of Materials Science & Technology*, 26(10), 914–920.
- Barth, C., Gonçalves, M. C., Pires, A. T. N., Roeder, J., & Wolf, B. A. (2000). Asymmetric polysulfone and polyethersulfone membranes: effects of thermodynamic conditions during formation on their performance. *Journal of Membrane Science*, 169, 287–299.
- Belkhiria, F., Rhouma, F. I. H., Hcini, S., Daoudi, M., Gammoudi, H., & Amlouk, M. (2017). Polycrystalline  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{GaO}_3$  perovskite synthesized by sol–gel process along temperature dependent photoluminescence. *Journal of Luminescence*, 181, 1–7.
- British Petroleum, (2016). "BP Statistical Review of World Energy June 2016"
- Chakrabarty, B., Ghoshal, A. K., & Purkait, M. K. (2008). Effect of molecular weight of PEG on membrane morphology and transport properties. *Journal of Membrane Science*, 309, 209–221.
- Côrte, R. V, Conceição, L., & Souza, M. M. V. M. (2013). Structural and electrical properties of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$  powders synthesized by solid state reaction. *Ceramics International*, 39(7), 7975–7982.
- Droushiotis, N., Hafiz, M., Othman, D., Doraswami, U., Wu, Z., Kelsall, G., & Li, K. (2009). Novel co-extruded electrolyte – anode hollow fibres for solid oxide fuel cells. *Electrochemistry Communications*, 11(9), 1799–1802.
- Egerton, R.F. 2005. "Physical Principle of Electron Microscopy", Springer, Canada
- Fabian, F. A., Pedra, P. P., Filho, J. L. S., Duque, J. G. S., & Meneses, C. T. (2015). Synthesis and characterization of  $\text{La}(\text{Cr},\text{Fe},\text{Mn})\text{O}_3$  nanoparticles obtained by co-precipitation method. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 379, 80–83.

- Fansuri, H., Syafi, M. I., Romdoni, S., Alfia, D., Utomo, W. P., Prasetyoko, D., Murwani, I. K. (2017). membranes : Effect of Ba<sup>2+</sup> substituents and sintering method to the density , hardness and thermal expansion coefficient of the membranes. *Advanced Materials Letters*, 8(7), 799–806.
- Fontaine, M. L., Larring, Y., Smith, J. B., Raeder, H., Andersen, Ø. S., Einarsrud, M., Bredesen, R. (2009). Shaping of advanced asymmetric structures of proton conducting ceramic materials for SOFC and membrane-based process applications. *Journal of the European Ceramic Society*, 29, 931–935.
- Grabowska, H., & Trawczy, J. (2010). Effect of synthesis method of LSCF perovskite on its catalytic properties for phenol methylation. *Solid State Ionics*, 181, 1131–1139.
- Habib, M.H., (2014). "Pengaruh Penambahan Aditif PEG Terhadap Morfologi dan Kekuatan Mekanik Membran Asimetris Perovskit La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>". Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya
- Hammond, C, 2009."The Basics of Crystallography and Diffraction : Third Edition", Oxford University Press
- Hu, T., Dong, G., Li, H., & Chen, V. (2014). Effect of PEG and PEO-PDMS copolymer additives on the structure and performance of Matrimid s hollow fibers for CO<sub>2</sub> separation. *Journal of Membrane Science*, 468, 107–117.
- Huang, B. X., Malzbender, J., Steinbrech, R.W., Wessel, E., Penkalla, H. J., Singheiser, L. (2010), Mechanical Aspect of Ferro-elastic behavior and Phese Composition of La<sub>0,58</sub>Sr<sub>0,42</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>8</sub>, *Journal of Membrane Science*, 349: 183-184.
- Jung, B., Ki, J., Kim, B., & Rhee, H. (2004). Effect of molecular weight of polymeric additives on formation , permeation properties and hypochlorite treatment of asymmetric polyacrylonitrile membranes. *Journal of Membrane Science*, 243, 45–57.
- Kathiraser, Y., Wang, Z., Yang, N., Zahid, S., & Kawi, S. (2013). Oxygen permeation and stability study of La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,8</sub>Ga<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub> (LSCG) hollow fiber membrane with exposure to CO<sub>2</sub>,CH<sub>4</sub> and He. *Journal of Membrane Science*, 427, 240–249.
- Liao, Q., Chen, Y., Wei, Y., Zhou, L., & Wang, H. (2014). Performance of U-shaped BaCo<sub>0,7</sub>Fe<sub>0,2</sub>Ta<sub>0,1</sub>O<sub>3-δ</sub> hollow-fiber membranes reactor with high oxygen permeation for methane conversion. *Chemical Engineering Journal*, 237, 146–152.
- Liu, Y., Koops, G. H., & Strathmann, H. (2003). Characterization of morphology controlled polyethersulfone hollow fiber membranes by the addition of polyethylene glycol to the dope and bore liquid solution. *Journal of Membrane Science*, 223, 187–199.

- Lua, A. C., & Shen, Y. (2013). Preparation and characterization of asymmetric membranes based on nonsolvent / NMP / P84 for gas separation. *Journal of Membrane Science*, 429, 155–167.
- Meng, B., Wang, Z., Tan, X., & Liu, S. (2009). SrCo<sub>0.9</sub>Sc<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> perovskite hollow fibre membrane for air separation at intermediate temperatures. *Journal of the European Ceramic Society*, 29, 2815–2822.
- Meng, B., Zhang, H., Qin, J., Tan, X., Ran, R., & Liu, S. (2015). The catalytic effects of La<sub>0.3</sub>Sr<sub>0.7</sub>Fe<sub>0.3</sub>Cu<sub>0.2</sub>Mo<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> perovskite and its hollow fibre membrane for air separation and methane conversion reactions. *Separation and Purification Technology*, 147, 406–413.
- Mohamed, M. H., Hafiz, M., Othman, D., Mutalib, M. A., Rahman, M., Jaafar, J., & Ismail, A. F. (2016). Structural Control of NiO – YSZ / LSCF – YSZ Dual-Layer Hollow Fiber Membrane for Potential Syngas Production. *International Journal Applied Ceramic Technology*, 809, 799–809.
- Ong, Y. K., & Chung, T. (2012). High performance dual-layer hollow fiber fabricated via novel immiscibility induced phase separation ( I2PS ) process for dehydration of ethanol. *Journal of Membrane Science*, 421–422, 271–282.
- Othman, N. H., Wu, Z., & Li, K. (2013). Bi<sub>1.5</sub>Y<sub>0.3</sub>Sm<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> -based ceramic hollow fibre membranes for oxygen separation and chemical reactions. *Journal of Membrane Science*, 432, 58–65.
- Pan, H., Li, L., Deng, X., Meng, B., Tan, X., & Li, K. (2013). Improvement of oxygen permeation in perovskite hollow fibre membranes by the enhanced surface exchange kinetics. *Journal of Membrane Science*, 428, 198–204.
- Paul, M., & Jons, S. D. (2016). Chemistry and fabrication of polymeric nano filtration membranes : A review. *Polymer*, 103, 417–456.
- Rodenbücher, C., Meuffels, P., Speier, W., Ermrich, M., Wrana, D., Krok, F., & Szot, K. (2017). Stability and Decomposition of Perovskite-Type Titanates upon High-Temperature Reduction. *Physica Status Solidi*, 11, 1–4.
- Ruiz-trejo, E., Boldrin, P., Medley-hallam, J. L., Darr, J., Atkinson, A., & Brandon, N. P. (2015). Partial oxidation of methane using silver / gadolinia-doped ceria composite membranes. *Chemical Engineering Science*, 127, 269–275.
- Saljoughi, E., Amirilargani, M., & Mohammadi, T. (2010). Effect of PEG additive and coagulation bath temperature on the morphology , permeability and thermal / chemical stability of asymmetric CA membranes. *Desalination*, 262(1–3), 72–78.
- Saljoughi, E., Sadrzadeh, M., & Mohammadi, T. (2009). Effect of preparation variables on morphology and pure water permeation flux through asymmetric cellulose acetate membranes. *Journal of Membrane Science*, 326, 627–634.
- Setiawan, A., Widiyastuti, W., Winardi, S., Nugroho, A. (2016). Sintesis Biomaterial Hydroxyapatite dengan Proses Flame Spray Pirolisis Disertai

Penambahan Aditif Organik. *Reaktor*, 6 (4),189-198

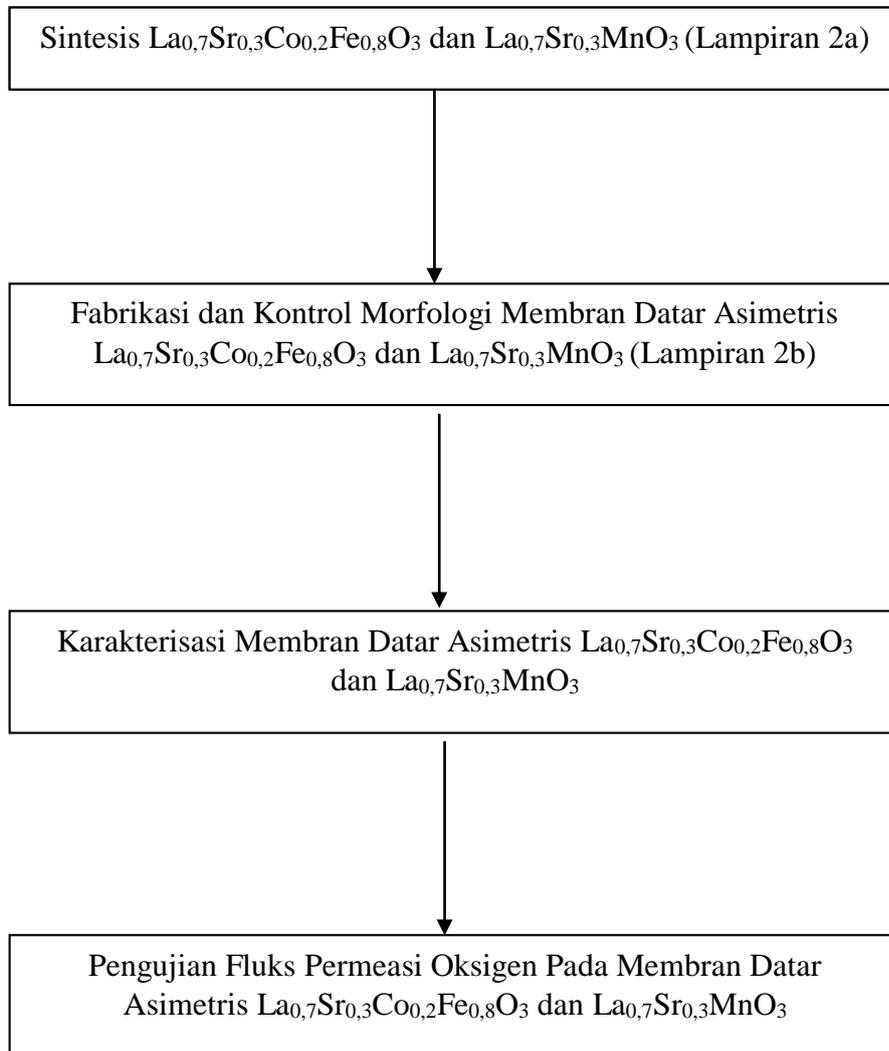
- Setyaningsih, E. P., Machfudzoh, M., Utomo, W. P., & Fansuri, H. (2016). Preparation of  $\text{CaTiO}_3$  Asymmetric Membranes Using Polyetherimide as Binder Polymer. *Indonesia Journal Chemistry*, 16(1), 20–24.
- Singh, B., Kochkodan, V., Hashaikeh, R., & Hilal, N. (2013). A review on membrane fabrication : Structure , properties and performance relationship. *Desalination*, 326, 77–95.
- Song, J., Kang, J., Tan, X., Meng, B., & Liu, S. (2016). Proton conducting perovskite hollow fibre membranes with surface catalytic modification for enhanced hydrogen separation. *Journal of the European Ceramic Society*, 36(7), 1669–1677.
- Sunarso, J., Baumann, S., Serra, J. M., Meulenber, W. A., Liu, S., Lin, Y. S., & Diniz, J. C. (2008). Mixed ionic – electronic conducting ( MIEC ) ceramic-based membranes for oxygen separation. *Journal of Membrane Science*, 320, 13–41.
- Takahashi, Y., Kawahara, A., Suzuki, T., Hirano, M., & Shin, W. (2010). Perovskite membrane of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Ti}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  for partial oxidation of methane to syngas. *Solid State Ionics*, 181, 300–305.
- Tan, X., & Liu, S. (2011). Morphology control of perovskite hollow fibre membranes for oxygen separation using different bore fluids. *Journal of Membrane Science*, 378, 308–318.
- Tan, X., Shi, L., Hao, G., Meng, B., & Liu, S. (2012).  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{FeO}_{3-\delta}$  perovskite hollow fiber membranes for oxygen permeation and methane conversion. *Separation and Purification Technology*, 96, 89–97.
- Utomo, W.P., (2014). "Kajian Permeabilitas Ion Oksigen pada Membran Rapat Asimetris  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7382),  $\text{SrCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (SCF 182),  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (BSCF 5582)", Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya
- Utomo, W.P, Utami, Z. D., Husnah, K. D., Purwanti, E., & Fansuri, H. (2014). Pengaruh penambahan aditif polietilena glikol pada membran asimetris  $\text{CaTiO}_3$ . In *Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan kimia VI* (pp. 433–442).
- Wongchitphimon, S., Wang, R., Jiraratananon, R., Shi, L., & Heng, C. (2011). Effect of polyethylene glycol ( PEG ) as an additive on the fabrication of polyvinylidene fluoride- co -hexafluoropropylene ( PVDF-HFP ) asymmetric microporous hollow fiber membranes. *Journal of Membrane Science*, 369(1–2), 329–338.
- Xu, Z., & Qusay, F. A. (2003). Effect of Polyethylene Glycol Molecular Weights and Concentrations on Polyethersulfone Hollow Fiber Ultrafiltration Membranes. *Journal of Applied Polymer Science*, 91, 3398–3407.

- Xu, Z., & Qusay, F. A. (2004). Effect of Polyethylene Glycol Molecular Weights and Concentrations on Polyethersulfone Hollow Fiber Ultrafiltration Membranes. *Journal of Applied Polymer Science*, 91, 3398–3407.
- Yang, N., Kathiraser, Y., & Kawi, S. (2013). A new asymmetric  $\text{SrCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.1}\text{Ga}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$  perovskite hollow fibre membrane for stable oxygen permeability under reducing condition. *Journal of Membrane Science*, 428, 78–85.
- Zeng, P., Wang, K., & Ahn, J. (2015). Effect of sintering temperature on performance of  $\text{SrSc}_{0.1}\text{Co}_{0.9}\text{O}_{3-\delta}$  oxygen semipermeable membrane. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 32(3), 757–765.
- Zhang, Q., Nakagawa, T., & Saito, F. (2000). Mechanochemical synthesis of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  by grinding constituent oxides. *Journal of Alloys and Compounds*, 308, 121–125.
- Zydorczak, B., Wu, Z., & Li, K. (2009). Fabrication of ultrathin  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$  hollow fibre membranes for oxygen permeation. *Chemical Engineering Science*, 64(21), 4383–4388.

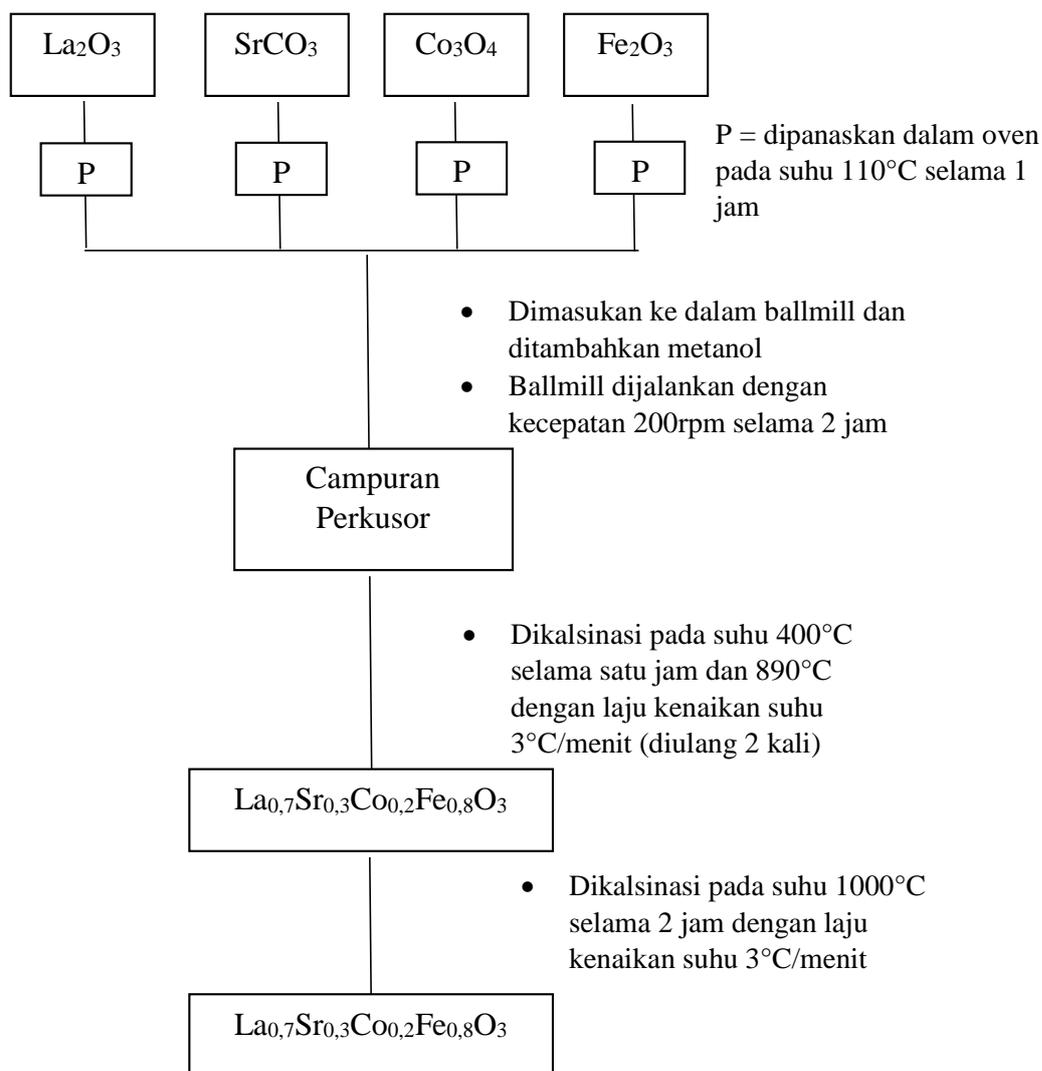
*\*Halaman ini sengaja dikosongkan\**

## LAMPIRAN

### Lampiran 1. Gambaran Penelitian



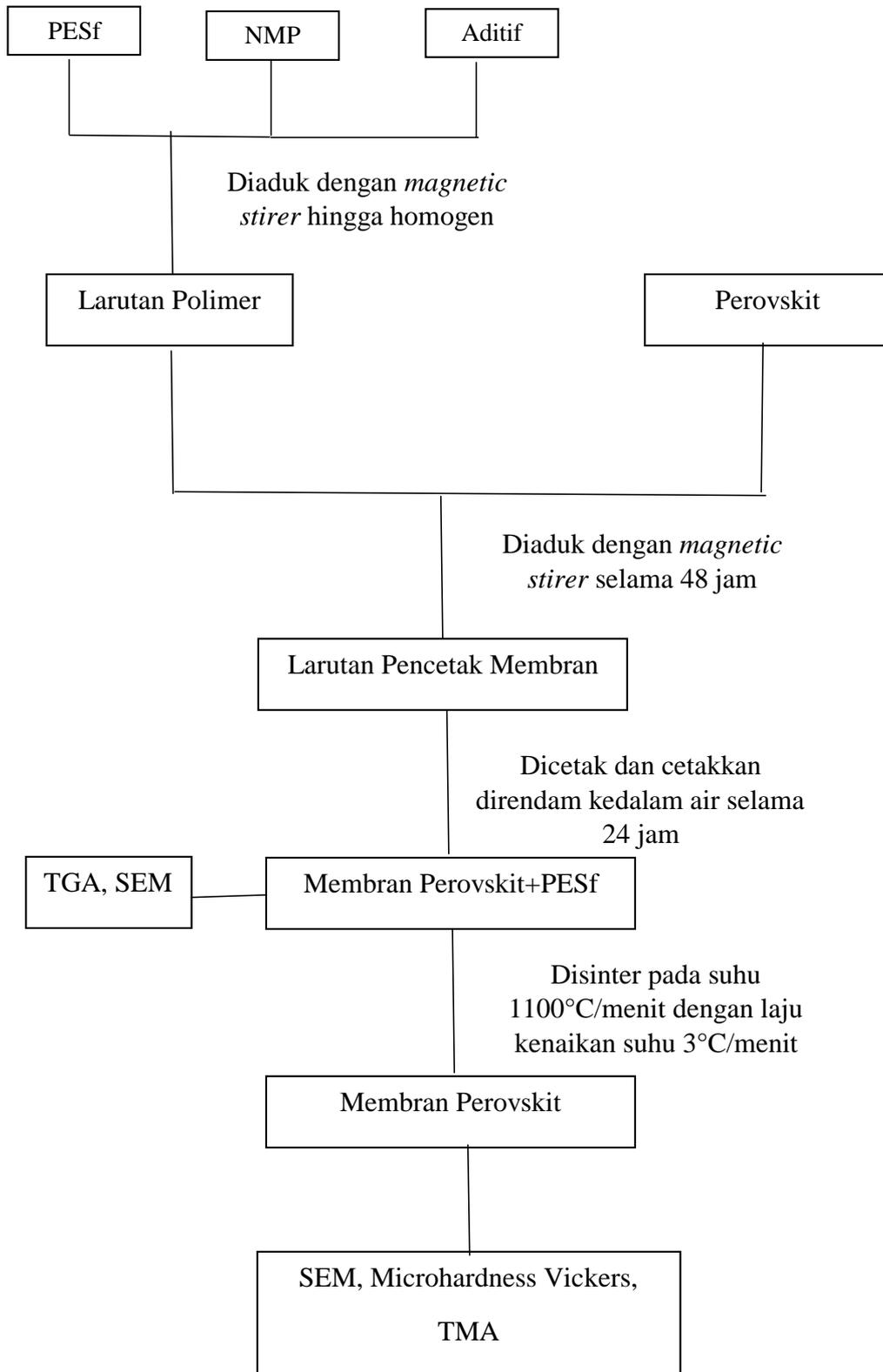
**Lampiran 1a.** Sintesis  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$



Catatan :

Metode diatas juga dilakukan untuk sintesis  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$  dengan perkursor  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{MnCO}_3$

**Lampiran 1b.** Fabrikasi Membran Datar Asimetris  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_3$  dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$



## Lampiran 2. Perhitungan Massa Perkusor



Massa target = 50 gram

Mol target =  $50 \text{ g} / 228 \text{ g/mol} = 0,219 \text{ mol}$

Massa  $\text{La}_2\text{O}_3 = 0,35 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{La}_2\text{O}_3$   
 $= 0,35 \times 0,219 \text{ mol} \times 325,8 \text{ g/mol} = 25,017 \text{ g}$

Massa  $\text{SrCO}_3 = 0,3 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{SrCO}_3$   
 $= 0,3 \times 0,219 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} = 9,714 \text{ g}$

Massa  $\text{Co}_3\text{O}_4 = 0,06 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{Co}_3\text{O}_4$   
 $= 0,06 \times 0,219 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol} = 3,520 \text{ g}$

Massa  $\text{Fe}_2\text{O}_3 = 0,4 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $= 0,4 \times 0,219 \text{ mol} \times 159,6 \text{ g/mol} = 14,005 \text{ g}$



Massa target = 50 gram

Mol target =  $50 \text{ g} / 226 \text{ g/mol} = 0,220 \text{ mol}$

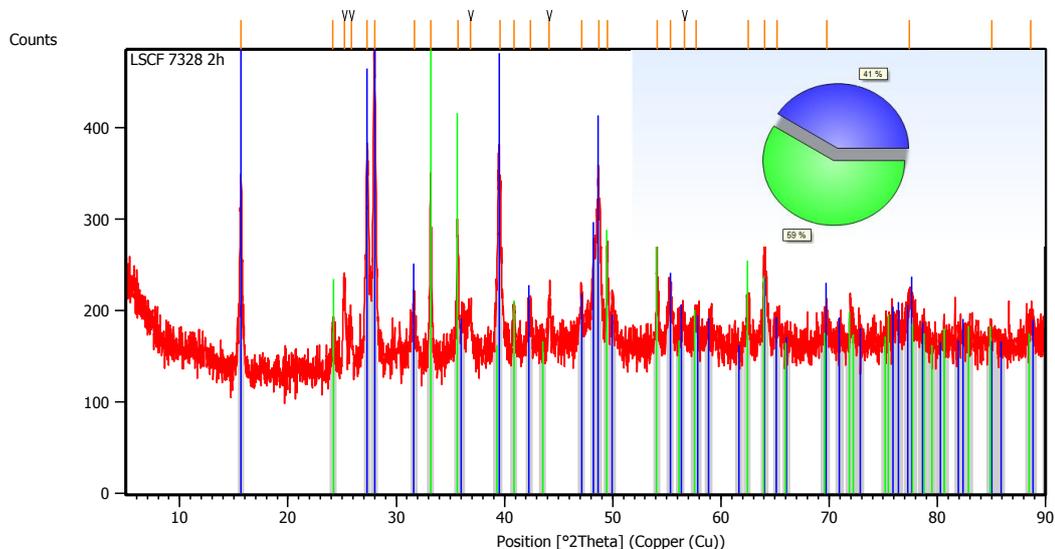
Massa  $\text{La}_2\text{O}_3 = 0,35 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{La}_2\text{O}_3$   
 $= 0,35 \times 0,220 \text{ mol} \times 325,8 \text{ g/mol} = 25,173 \text{ g}$

Massa  $\text{SrCO}_3 = 0,3 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{SrCO}_3$   
 $= 0,3 \times 0,220 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} = 9,775 \text{ g}$

Massa  $\text{MnCO}_3 = 1 \times \text{mol target} \times \text{mr } \text{MnCO}_3$   
 $= 1 \times 0,220 \text{ mol} \times 115 \text{ g/mol} = 25,387 \text{ g}$

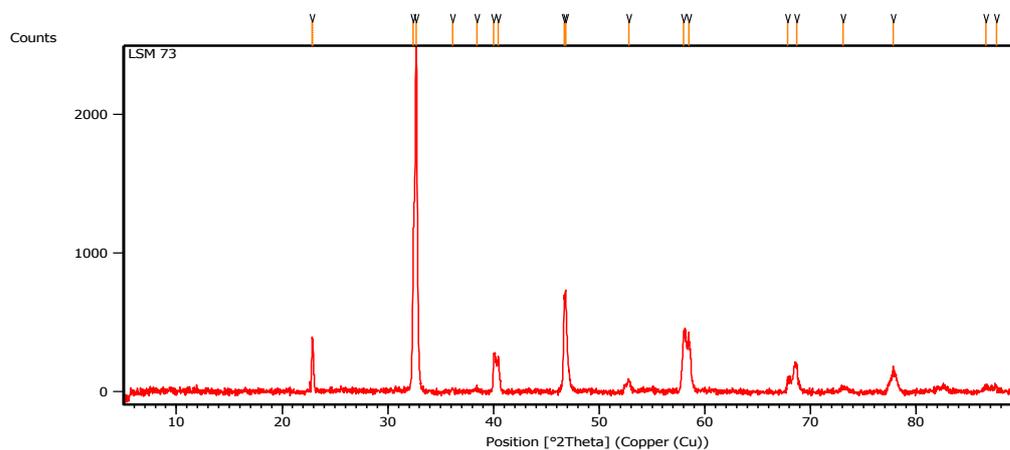
### Lampiran 3. Data XRD LSCF 7328 dan LSM 73

#### Data XRD LSCF 7328



Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
15.6633	207.42	0.1004	5.65770	62.61
24.1662	56.90	0.1004	3.68288	17.18
25.2275	99.10	0.1673	3.53029	29.91
25.8607	44.38	0.2676	3.44528	13.40
27.3078	236.38	0.1004	3.26590	71.35
27.9854	331.29	0.2007	3.18835	100.00
31.6500	63.55	0.1338	2.82705	19.18
33.1673	190.24	0.0836	2.70111	57.42
35.6810	126.80	0.1673	2.51637	38.27
36.8811	47.01	0.4015	2.43720	14.19
39.5881	181.38	0.3011	2.27657	54.75
40.8956	46.01	0.1338	2.20675	13.89
42.3644	23.45	0.4015	2.13358	7.08
44.1137	51.00	0.2007	2.05295	15.39
47.1086	53.81	0.2676	1.92918	16.24
48.6959	171.49	0.3346	1.86995	51.76
49.4833	92.40	0.0836	1.84202	27.89
54.0801	133.72	0.0612	1.69441	40.36
55.3291	53.74	0.4684	1.66045	16.22
56.6130	20.21	0.4015	1.62581	6.10
57.7167	20.44	0.4015	1.59731	6.17
62.5183	38.97	0.2676	1.48569	11.76
64.0495	123.27	0.0836	1.45381	37.21
65.1708	22.12	0.4015	1.43149	6.68
69.7626	29.83	0.5353	1.34808	9.00
77.4323	37.38	0.4015	1.23259	11.28
85.0492	14.21	0.8029	1.14060	4.29
88.6588	27.64	0.5353	1.10326	8.34

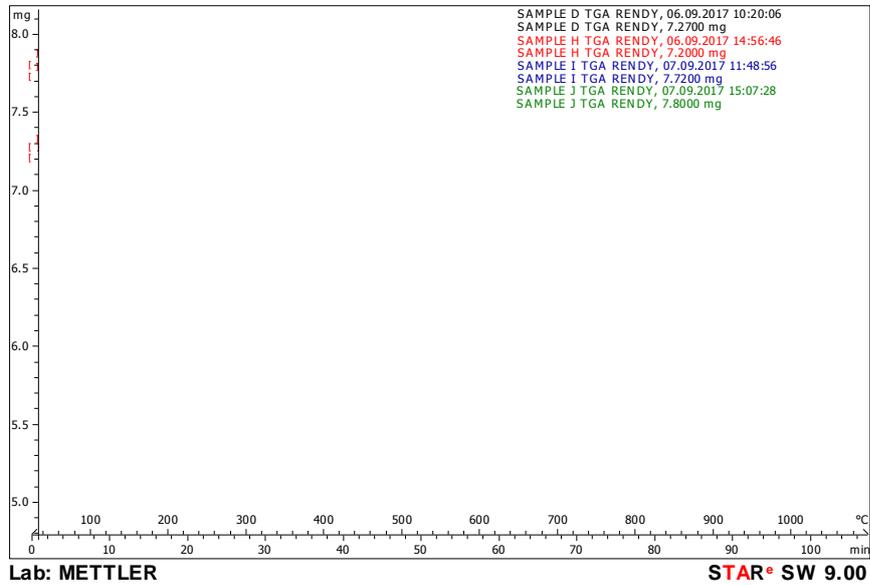
## Data XRD LSM 73



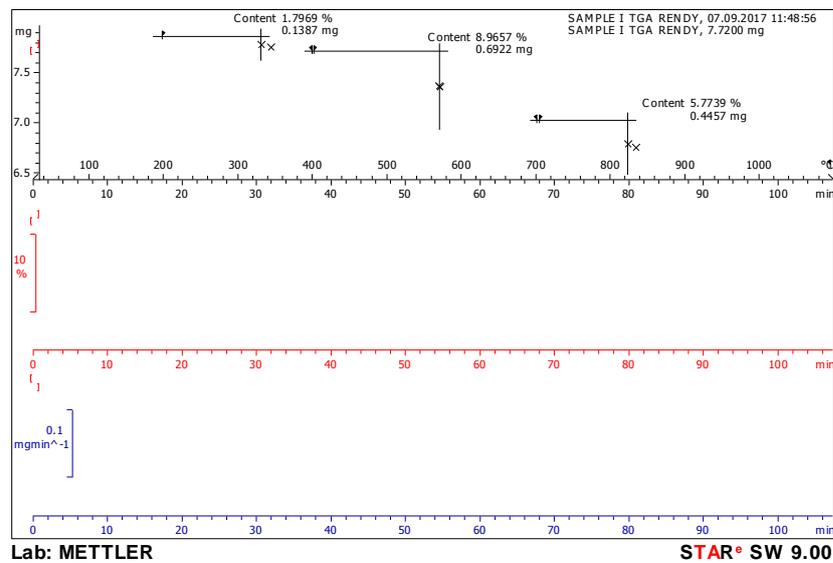
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.8384	360.65	0.0816	3.89068	14.81
22.9227	335.75	0.0612	3.88620	13.78
32.4027	1115.07	0.1020	2.76079	45.78
32.6642	2435.75	0.1836	2.73929	100.00
36.0997	30.13	0.2448	2.48608	1.24
38.4471	17.51	0.4896	2.33952	0.72
40.0102	253.49	0.1020	2.25166	10.41
40.4682	263.72	0.1224	2.22722	10.83
46.6753	686.86	0.0816	1.94447	28.20
46.8203	725.58	0.1020	1.93878	29.79
52.8086	83.93	0.3264	1.73217	3.45
57.9843	424.45	0.1428	1.58926	17.43
58.4629	398.79	0.2040	1.57739	16.37
67.8575	98.26	0.1632	1.38006	4.03
68.6843	188.23	0.2448	1.36545	7.73
73.0816	23.00	0.6528	1.29376	0.94
77.8127	158.15	0.3264	1.22649	6.49
86.5991	40.03	0.5712	1.12319	1.64
87.5867	40.23	0.2448	1.11305	1.65

### Lampiran 4. Data Karakterisasi TGA

Pada data ini terdapat perubahan notasi yang dicantumkan pada penulisan data TGA di bab 4. Perubahan notasi tersebut yaitu : D menjadi E1, H menjadi E2, I menjadi A1 dan J menjadi A2.



SAMPLE D TGA RENDY, 06.09.2017 10:20:06  
 SAMPLE D TGA RENDY, 7.2700 mg



SAMPLE J TGA RENDY, 07.09.2017 15:07:28  
 SAMPLE J TGA RENDY, 7.8000 mg

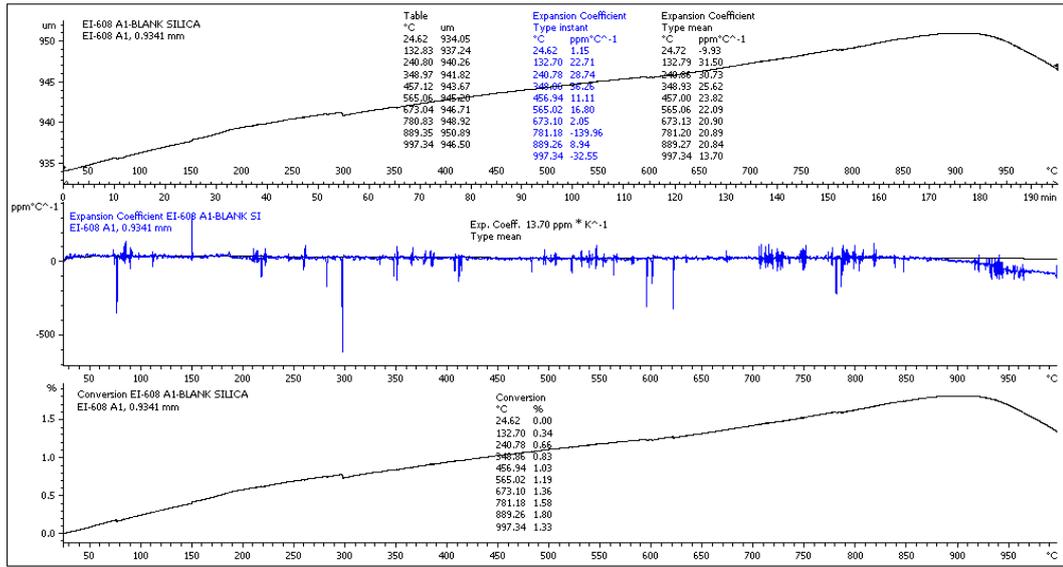
**Lampiran 5.** Hasil Pengukuran Ukuran Pori Membran

Kode Membran	Panjang ukuran pori (cm)					Rata-rata ukuran pori (cm)	Nilai skala ( $\mu\text{m}$ )	Nilai skala ( $\mu\text{m}$ )	Rata-rata ukuran pori( $\mu\text{m}$ )
	1	2	3	4	5				
A1S	1	0,5	0,2	0,5	0,3	0,5	1	100	50,00
B1S	0,5	0,5	0,6	0,7	0,6	0,58	1,5	200	77,33
C1S	0,6	0,7	0,5	0,6	0,7	0,62	1,4	200	88,57
D1S	1	1	1,1	1,2	1,2	1,1	1,2	100	91,67
E1S	1,1	1,1	1,3	1,2	1,4	1,22	1,3	100	93,85
A2S	0,2	0,4	0,3	0,2	0,3	0,28	1,3	100	21,54
B2S	0,4	0,5	0,5	0,6	0,3	0,46	1	100	46,00
C2S	0,6	0,7	0,7	0,4	1	0,68	1,1	100	61,82
D2S	1,3	1,1	0,7	1	1,2	1,06	1,4	100	75,71
E2S	1,2	1,3	1	1,2	1	1,14	1,3	100	87,69

**Lampiran 6.** Hasil Pengujian Kekerasan dengan *Microhardness Vickers*

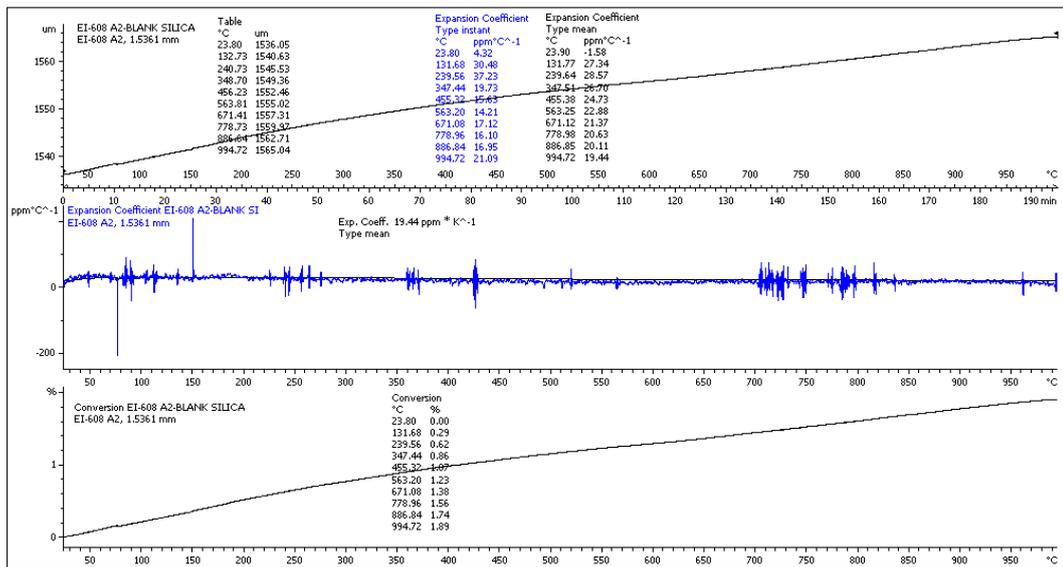
<b>Kode Membran</b>	<b>P1 (Hv)</b>	<b>P2 (Hv)</b>	<b>P3 (Hv)</b>	<b>P4(Hv)</b>	<b>P5 (Hv)</b>	<b>Rata-rata (Hv)</b>
A1S	1,6	1,7	1,6	1,6	1,8	1,66
B1S	1,4	1,3	1,2	1,3	1,3	1,3
C1S	1,3	1,2	1,3	1,3	1,5	1,32
D1S	1,1	1,2	1,3	1,3	1,2	1,22
E1S	1,2	1,3	1	1,3	1,4	1,24
A2S	5,1	3,6	2	2,6	2,1	3,08
B2S	1,7	1,7	1,5	1,6	1,6	1,62
C2S	1,4	1,3	1,5	1,4	1,5	1,42
D2S	2,3	1,4	1,3	1,6	1,3	1,58
E2S	1,4	1,4	1,3	1,5	1,3	1,38

## Lampiran 7. Data Karakterisasi TMA



ITS COE Laboratory: METTLER

STAR® SW 10.00



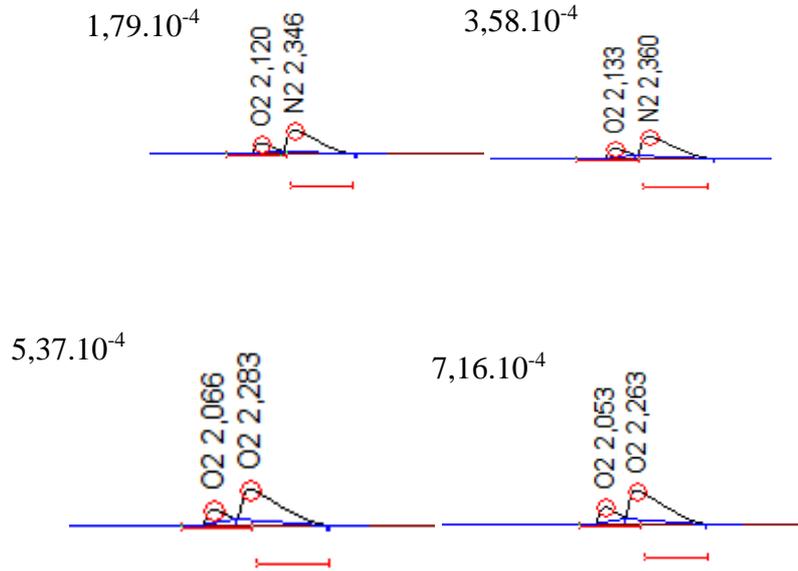
ITS COE Laboratory: METTLER

STAR® SW 10.00

**Lampiran 8.** Hasil Pengukuran Volume Pori dan Porositas

<b>Kode Membran</b>	<b>Massa Kering (g)</b>	<b>Massa basah 1(g)</b>	<b>Massa basah 2 (g)</b>	<b>Massa basah 3 (g)</b>	<b>Massa Basah Rata-Rata (g)</b>	<b>Porositas (%)</b>	<b>Volume Pori (mL/g)</b>
A1S	0,13	0,23	0,21	0,24	0,23	49,63	0,78
B1S	0,17	0,30	0,32	0,32	0,31	73,32	0,88
C1S	0,12	0,27	0,26	0,27	0,27	74,48	1,28
D1S	0,10	0,27	0,26	0,24	0,25	75,15	1,45
E1S	0,11	0,28	0,29	0,27	0,28	85,10	1,59
A2S	0,24	0,24	0,34	0,32	0,30	29,03	0,24
B2S	0,38	0,43	0,45	0,46	0,45	33,07	0,17
C2S	0,08	0,17	0,19	0,18	0,18	50,80	0,44
D2S	0,20	0,30	0,29	0,29	0,29	46,83	0,47
E2S	0,23	0,35	0,35	0,36	0,35	61,88	1,56

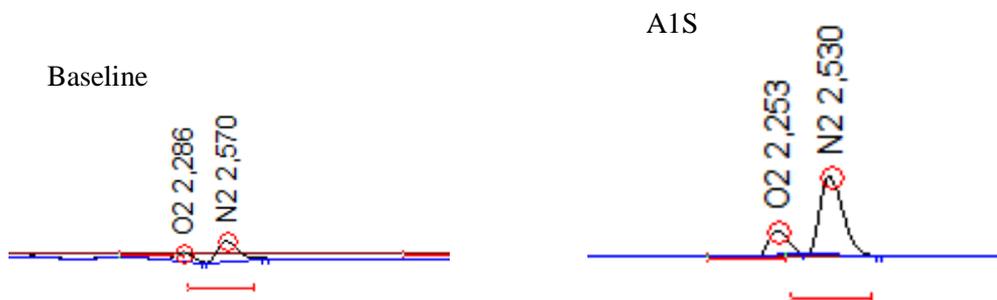
**Lampiran 9** Kromatogram untuk pembuatan kurva standard



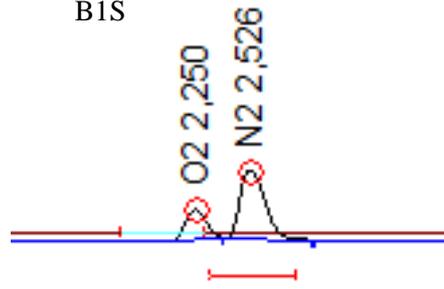
mmol O <sub>2</sub>	Luas area oksigen
0	0
$1,79 \cdot 10^{-4}$	2,6064
$3,58 \cdot 10^{-4}$	5,5856
$5,37 \cdot 10^{-4}$	7,8612
$7,16 \cdot 10^{-4}$	11,3818

**Lampiran 10.** Pengukuran fluks oksigen membran LSCF 7328

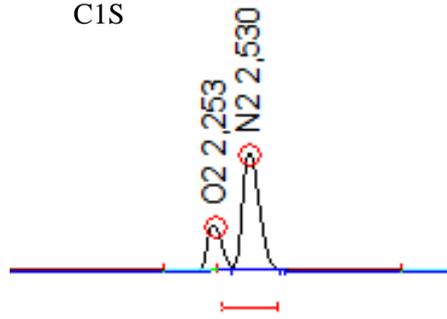
Hasil analisis GC untuk membran A1S, C1S dan E1S terdapat pada Gambar 4.18



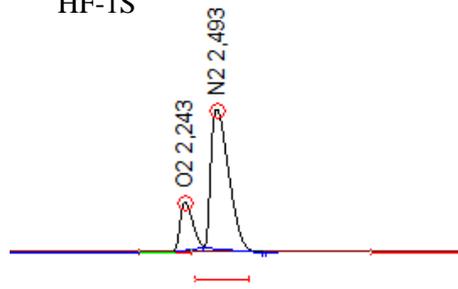
B1S



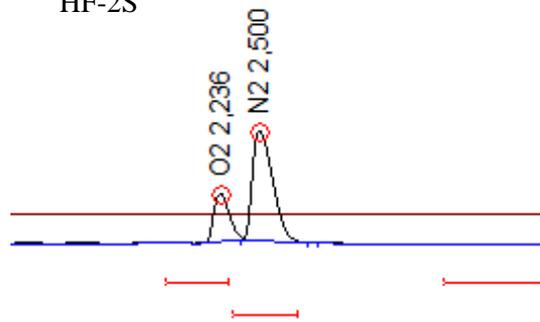
C1S



HF-1S



HF-2S



<b>Kode</b>	<b>Luas area oksigen</b>	<b>Pengurangan luas area dengan baseline</b>	<b>mmol O<sub>2</sub></b>	<b>JO<sub>2</sub> (mmol.s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>)</b>
Baseline	2,3124	-	-	-
A1S	2,8585	0,5461	0,354.10 <sup>-4</sup>	2,00.10 <sup>-7</sup>
C1S	3,3984	1,086	0,704.10 <sup>-4</sup>	3,98.10 <sup>-7</sup>
E1S	4,1578	1,8454	1,196.10 <sup>-4</sup>	6,67.10 <sup>-7</sup>
HF1S	7,8626	5,5502	3,596.10 <sup>-4</sup>	3,57.10 <sup>-8</sup>
HF2S	7,243	4,9306	3,194.10 <sup>-4</sup>	3,1.10 <sup>-8</sup>

Keterangan :

Luas area efektif membran datar = 0,4420 cm<sup>2</sup>

Luas area efektif membran hollow fiber = 25,12 cm<sup>2</sup>

laju alir gas He = 30 mL/menit

Volume sampel loop = 200 μL = 0,2 mL

Contoh perhitungan fluks oksigen untuk membran A1S :

$$JO_2 = \frac{30 \text{ mL/min} \times 01,77 \cdot 10^{-4} \text{ mmol/mL}}{0,4420 \text{ cm}^2} \times \frac{1 \text{ min}}{60 \text{ s}} = 2,00 \cdot 10^{-7} \text{ mmol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$$

## BIODATA PENULIS



Penulis dilahirkan di Sampit, Kalimantan Tengah pada tanggal 23 Oktober 1993 dengan nama lengkap Rendy Muhamad Iqbal. Penulis merupakan anak kedua dari pasangan H. Ruslan Abdul Gani, S.H dan Hj. Noorhudah. Pendidikan formal yang telah ditempuh penulis yaitu SD Negeri 8 Mentawa Baru Hulu, SMP Negeri 1 Sampit, SMA Negeri 1 Sampit, dan pendidikan S1 di Jurusan Kimia Universitas Brawijaya. Penulis diterima di program pascasarjana jurusan Kimia ITS pada tahun 2016 dan terdaftar dengan NRP 01211550012001. Penulis mengambil bidang minat Kimia Anorganik dibawah bimbingan Bapak Hamzah Fansuri, Ph.D dan Bapak Dr. Djoko Hartanto, M.Si, selain itu penulis juga tergabung dalam riset grup *Material for Energy and Environment* yang memiliki fokus penelitian dibidang energi dan lingkungan. Selama menyelesaikan studi pascasarjana di Kimia ITS, penulis mendapatkan kesempatan mengikuti *joint research program* di *Research Center of Advanced Membrane Technology (AMTEC)* – Universiti Teknologi Malaysia dibawah supervisor Assoc. Prof. Dr. Mohd Hafiz Dzarfan Othman. Penulis juga aktif dalam organisasi daerah Ikatan Pemuda dan Mahasiwa Kotawaringin Timur (IPMK) wilayah Surabaya sebagai Ketua Umum periode 2016/2017. Pengalaman lain yang didapat selama studi S2 yaitu menjadi asisten praktikum pada kuliah Struktur dan Reaktivitas Senyawa Anorganik (SRSA), Unsur dan Senyawa Anorganik (USA), dan Sintesis dan Karakterisasi Material Anorganik (SKMA). Penulis dapat dihubungi melalui email : [rendiqbale@gmail.com](mailto:rendiqbale@gmail.com).





