



---

**SKRIPSI**

**PREPARASI MEMBRAN DATAR**

**$\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) DENGAN BAHAN PEREKAT AMILUM**

**ARAS SUCI WIJAYANTI**

**NRP 01211440000053**

**Dosen Pembimbing:**

**Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D.**

**Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.**

**DEPARTEMEN KIMIA**

**FAKULTAS ILMU ALAM**

**INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER**

**SURABAYA**

**2018**



**Script**

**PREPARATION OF  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$   
( $0.5 \leq x \leq 0.7$ ) FLAT MEMBRANES USING AMYLUM  
BINDER**

**ARAS SUCI WIJAYANTI  
NRP 0121144000053**

**Supervisor:**

**Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D.  
Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.**

**DEPARTEMENT OF CHEMISTRY  
FACULTY OF SCIENCE  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2018**

**PREPARASI MEMBRAN DATAR  
 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) DENGAN BAHAN  
PEREKAT AMILUM**

**SKRIPSI**

Disusun sebagai syarat untuk memperoleh gelar  
sarjana sains  
pada program studi S-1 Kimia  
Fakultas Ilmu Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh:

**ARAS SUCI WIJAYANTI**  
**NRP. 0121144000053**

**DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS ILMU ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2018**

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

**LEMBAR PENGESAHAN**

**PREPARASI MEMBRAN DATAR  
 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) DENGAN BAHAN  
PEREKAT AMILUM**

**SKRIPSI**

Oleh:

**ARAS SUCI WIJAYANTI**  
**NRP. 0121144000053**

Surabaya, 6 Agustus 2018  
Menyetujui,

Dosen Pembimbing I

Dosen Pembimbing II

**Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D.**  
**NIP. 19691017 199412 1 001**

**Wahyu P. Utomo, S.Si., M.Si.**  
**NIP. 19890908 201504 1 001**



Mengetahui :  
Kepala Departemen Kimia,

**Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc**  
**NIP. 19710616 199703 1 002**

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

*Karya ini dipersembahkan untuk  
Ayah, Ibu (Almh), dan kakak-kakaku  
Bapak Hamzah dan Bapak Wahyu selaku Dosen Pembimbing  
Teman-teman GALAXY 2014 tersayang  
Dan semua pihak yang telah membantu selesainya naskah ini  
dimanapun mereka berada*

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

**PREPARASI MEMBRAN DATAR  
Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0,8</sub>Fe<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0,5 ≤ x ≤ 0,7) DENGAN BAHAN  
PEREKAT AMILUM**

**Nama** : Aras Suci Wijayanti  
**NRP** : 01211440000053  
**Departemen** : Kimia  
**Pembimbing 1** : Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D  
**Pembimbing 2** : Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.

**ABSTRAK**

Membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0,8</sub>Fe<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0,5 ≤ x ≤ 0,7) telah berhasil disiapkan dengan bahan perekat amilum melalui dua metode pelapisan yang berbeda yakni, metode *pre-sintering* dan *post-sintering*. Pengamatan SEM pada permukaan dan penampang lintang membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0,8</sub>Fe<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub> dilakukan untuk penentuan metode pelapisan yang lebih efektif dalam pelapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada permukaan membran datar BSCF. Metode *post-sintering* menunjukkan hasil yang lebih baik dibandingkan metode *pre-sintering* dimana pada metode *post-sintering* terdapat lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada permukaan membran meskipun sebarannya tidak merata. Hasil ini didukung oleh analisis sebaran unsur dengan SEM-EDX dimana terdapat peningkatan intensitas unsur Co di permukaan membran datar BSCF yang menunjukkan lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada metode *post-sintering*. Uji permeasi oksigen menunjukkan membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 memiliki fluks permeasi oksigen yang lebih tinggi daripada membran datar BSCF 5582 tanpa lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada suhu uji 600, 700 dan 800 °C. Hasil yang sama juga terjadi pada variasi laju alir helium, dimana pada laju alir helium 20, 30 dan 40 mL.menit<sup>-1</sup>, fluks permeasi oksigen membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 juga lebih tinggi daripada membran datar BSCF 5582 tanpa lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

**Kata kunci:** Membran datar, metode pelapisan, Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0,8</sub>Fe<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub>, Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, fluks oksigen

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

**PREPARATION OF  
Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0.5 ≤ x ≤ 0.7) FLAT  
MEMBRANES USING AMYLUM BINDER**

**Name** : Aras Suci Wijayanti  
**NRP** : 0121144000053  
**Department** : Chemistry  
**Supervisor 1** : Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D  
**Supervisor 2** : Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.

**ABSTRACT**

Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0.5 ≤ x ≤ 0.7) flat membranes was succeed prepared using amylum as a binder with two different coating method namely pre-sintering and post-sintering method. SEM was used to observe surface and cross section morphology of the flat membrane Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0.5 ≤ x ≤ 0.7) to determine the most effective method of coating Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> on the surface of BSCF membranes. Post-sintering method show a better result than pre-sintering method. The SEM results show that Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> was coated on BSCF membrane that was prepared using post-sintering method with uneven distribution. SEM-EDX analysis to study the distribution of elements show the increase of the cobalt concentration on the Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub> (0.5 ≤ x ≤ 0.7) flat membranes that was prepared by post-sintering method. The oxygen permeation test showed that Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 flat membrane has a higher oxygen flux than unmodified BSCF 5582 membrane at 600, 700 and 800 °C. The oxygen permeation test with helium flow rate variation was showed same result. Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 flat membrane also had higher oxygen flux than unmodified BSCF membrane at 20, 30, and 40 mL.min<sup>-1</sup>.

**Key Words:** flat membrane, coating method, Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0.8</sub>Fe<sub>0.2</sub>O<sub>3-δ</sub>, Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, oxygen flux.

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## KATA PENGANTAR

Segala puji bagi Allah SWT yang telah melimpahkan rahmat dan karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan penulisan Skripsi yang berjudul “Preparasi Membran Datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) dengan Bahan Perikat Amilum”. Tulisan ini tidak dapat terwujud tanpa bantuan, dukungan dan dorongan dari semua pihak. Untuk itu pada kesempatan ini, penulis ingin menyampaikan terima kasih kepada:

1. Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D. dan Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si selaku dosen pembimbing yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan selama penyusunan tugas akhir ini.
2. Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc. selaku Kepala Departemen Kimia yang telah memberikan fasilitas selama penyusunan kolokium ini.
3. Dra. Ratna Ediati, MS., Ph.D. selaku dosen wali atas semua pengarahannya.
4. Dr. Djoko Hartanto, M.Si selaku Kepala Laboratorium Kimia Material dan Energi
5. Kepala Labarotarium Beton Departemen Teknik Infrastruktur Sipil
6. Ibu (almh.) atas segala semangat, cinta, dan cita-cita yang ditanamkan, serta Ayah dan kakak-kakak serta keluarga besar yang selalu memberi dukungan dan doa.
7. Teman-teman kelompok penelitian material penyimpan energi yang banyak memberikan bantuan dan saran
8. Teman-teman mahasiswa Kimia FMIPA angkatan 2014 yang selalu memberikan semangat untuk untuk menyelesaikan tugas akhir ini, serta semua pihak yang telah membantu, yang tidak mungkin penulis sebutkan satu persatu.

Penulis menyadari bahwa tugas akhir ini tidak lepas dari kekurangan, oleh karena itu penulis terbuka terhadap kritik dan

saran yang membangun. Semoga tugas akhir ini memberikan manfaat bagi penulis dan pembaca.

Surabaya, 6 Agustus 2018

Penulis

## DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN.....	v
ABSTRAK .....	ix
ABSTRACT .....	xi
KATA PENGANTAR .....	xiii
DAFTAR ISI.....	xv
DAFTAR GAMBAR .....	xvii
DAFTAR TABEL .....	xxi
BAB I PENDAHULUAN .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Rumusan Masalah .....	4
1.3 Tujuan Penelitian.....	5
1.4 Batasan Penelitian .....	5
1.5 Manfaat Penelitian.....	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI.....	7
2.1 Oksida Perovskit.....	7
2.1.1 Substitusi Parsial .....	9
2.1.2 $Ba_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-\delta}$ (BSCF) sebagai Material Penghantar Ion Oksigen.....	10
2.2 Membran <i>Mixed Ionic and Electronic Conductivity</i> (MIEC).....	12
2.2.1 Membran Rapat Asimetris .....	14
2.2.2 Pelapisan Permukaan Membran MIEC.....	17
2.2.3 Fluks Oksigen Membran MIEC .....	22
2.3 Sintesis Oksida Perovskit dan Membran Datar .....	24
2.3.1 Sintesis $Ba_xSr_{1-x}Co_yFe_{1-y}O_{3-\delta}$ (BSCF) dengan Metode <i>Solid State Reaction</i> .....	24
2.3.2 Pembuatan Membran Datar BSCF .....	26
2.4 $Co_3O_4$ Sebagai Katalis Membran MIEC.....	28
2.5 Karakterisasi Oksida Perovskit dan Membran MIEC..	29
2.5.1 Difraksi Sinar X ( <i>X-Ray Diffraction</i> /XRD) .....	29
2.5.2 <i>Scanning Electron Microscopy and Energy</i> <i>Dispersive X-Ray Spectroscopy</i> (SEM-EDX).....	30

BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	33
3.1. Alat dan Bahan.....	33
3.1.1 Alat.....	33
3.1.2 Bahan.....	33
3.2 Metode Penelitian.....	33
3.2.1 Sintesis Oksida Perovskit $Ba_xSr_{1-x}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$ $(0,5 \leq x \leq 0,7)$ .....	33
3.2.2 Pembuatan Membran Datar Oksida Perovskit $Ba_xSr_{1-x}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$ $(0,5 \leq x \leq 0,7)$ .....	36
3.2.3 Pembuatan Membran Datar $Co_3O_4$ /BSCF 5582 dengan Bahan Perekat Amilum Melalui Metode <i>Pre-</i> <i>sintering</i> dan <i>Post-sintering</i> .....	36
3.2.4 Pembuatan Membran Datar $Co_3O_4$ /BSCF 6482 dan $Co_3O_4$ /BSCF 7382 dengan Metode <i>Post-sintering</i> .....	38
3.2.5 Uji Fluks Oksigen.....	39
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN .....	41
4.1 Sintesis Oksida Perovskit BSCF 5582, 6482, dan 7382.....	41
4.2 Pembuatan Membran Datar Oksida Perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, BSCF 7382 .....	44
4.3 Pembuatan Membran Datar $Co_3O_4$ /BSCF 5582 dengan Metode <i>Pre-sintering</i> dan <i>Post-sintering</i> .....	45
4.3.1 Pembuatan Membran dengan Metode <i>Pre-Sintering</i> ...	46
4.3.2 Pembuatan Membran dengan Metode <i>Post-Sintering</i> .	48
4.4 Pembuatan Membran Datar $Co_3O_4$ /BSCF 6482 dan $Co_3O_4$ /BSCF 7382 dengan Metode <i>Post-sintering</i> .....	55
4.5 Permeabilitas Oksigen .....	62
BAB V KESIMPULAN.....	67
5.1 Kesimpulan .....	67
5.2 Saran.....	67
DAFTAR PUSTAKA .....	69
LAMPIRAN .....	77
BIODATA PENULIS .....	99

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2. 1	Struktur oksida perovskite ideal $ABO_3$ (Artini, 2017) .....	7
Gambar 2. 2	Struktur Oksida perovskit dengan kekosongan oksigen (Zhou dkk., 2009).....	8
Gambar 2. 3	Perbandingan permiasi oksigen membran BSCF dan SCF (Shao dkk ., 2001).....	11
Gambar 2. 4	Fluks permeas oksigen pada BSCF (a) $850^\circ\text{C}$ dalam atmosfer He, (b) $825^\circ\text{C}$ dalam atmosfer udara dan (c) $750^\circ\text{C}$ dalam atmosfer udara (Shao dkk ., 2001 b). .....	12
Gambar 2. 5	Mekanisme transport oksigen pada membran MIEC (Tan dan Li, 2013).....	14
Gambar 2. 6	Mekanisme transfer oksigen pada membran asimetris SD (Chang dkk., 2008).....	15
Gambar 2. 7	Penampang lintang membran asimetris BSCF yang disiapkan dengan metode <i>dry pressing</i> (Rachadel dkk., 2017) .....	16
Gambar 2. 8	Penampang lintang lapisan pendukung berpori yang disiapkan melalui metode <i>screen printing</i> (Hayamizu dkk., 2014).....	17
Gambar 2. 9	Faktor penentu fluks oksigen membran pada berbagai ketebalan membran (Sunarso dkk., 2008).....	18
Gambar 2. 10	Hasil SEM <i>cross section</i> pada membran BSCF <i>hollow fiber</i> berlapis LSTF (Park dkk., 2017) .....	19
Gambar 2. 11	Penampang lintang <i>nanorod</i> $\text{Co}_3\text{O}_4$ pada permukaan membran datar BSCF dengan metode (a) hidrotermal (Li dkk., 2015) dan (b) <i>dip-coating</i> (Wang dkk., 2017).....	21
Gambar 2. 12	Reaktor pengujian fluks oksigen membran datar (Li dkk., 2015) .....	23
Gambar 2. 13	Foto SEM (a) partikel BSCF-SC, (b) BSCF-SG, dan (c) BSCF-SS (Xu dkk., 2016).....	25

Gambar 2. 14	Pola XRD $Ba_xSr_{x-1}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$ (a) $x = 0,2$ ; (b) $x = 0,3$ ; (c) $x = 0,4$ ; (d) $x = 0,5$ ; (e) $x = 0,6$ ; dan (f) $x = 0,7$ (Zhao dkk., 2008) .....26
Gambar 2. 15	Beberapa jenis kecacatan pada membran yang disiapkan melalui metode <i>uniaxial compaction</i> (Zhu dan Yang, 2016) .....27
Gambar 2. 16	Skema pembuatan membran dua lapis melalui metode <i>dry pressing</i> (Chen dkk., 2007). .....28
Gambar 2. 17	Interaksi antara sinar elektron dengan sampel (Darab, 2008).....31
Gambar 2. 18	Sebaran unsur (a) tembaga, (b) stronsium, (c) kobalt, dan (d) barium (Leo dkk., 2017).....32
Gambar 3. 1	Tahapan kalsinasi BSCF pada suhu (a) 890 dan (b) 1000°C .....35
Gambar 3. 2	Skema Membran Datar $Co_3O_4/BSCF$ 5582 .....36
Gambar 3. 3	Skema reaktor uji fluks oksigen.....39
Gambar 4. 1	(a) campuran serbuk prekursor yang berwarna merah keunguan dan (b) oksida perovskit setelah tahap kalsinasi yang berwarna hitam. ....43
Gambar 4. 2	Difraktogram sinar-X serbuk hasil sintesis.....43
Gambar 4. 3	Membran mentah (a) BSCF 5582, (b) BSCF 6482, dan (c) 7382. ....45
Gambar 4. 4	Membran datar BSCF 5582 (a) mentah, (b) setelah proses sintering tahap kedua (1150 °C), (c) setelah sintering tahap pertama (900 °C), (d) setelah pelapisan suspensi $Co_3O_4$ -amilum, dan (e) setelah pendiaman Membran datar $Co_3O_4/BSCF$ selama satu hari.....46
Gambar 4. 5	Membran BSCF 5582 (a) sebelum dan (b) sesudah sintering suhu 1150°C serta (c) hasil uji tetes air. ....49
Gambar 4. 6	Membran BSCF 5582 (a) setelah pelapisan suspensi $Co_3O_4$ -amilum, (b) setelah pendiaman selama satu hari, dan (c) setelah proses kalsinasi suhu 800 °C .....50

Gambar 4. 7	Morfologi permukaan (a) membran datar BSCF 5582, membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 dengan (b) metode <i>pre-sintering</i> dan (c) metode <i>post-sintering</i> .....	51
Gambar 4. 8	Morfologi lapisan $\text{Co}_3\text{O}_4$ pada membran BSCF 5582.....	53
Gambar 4. 9	Penampang lintang membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 dengan metode (a) <i>Pre-sintering</i> dan (b) <i>post-sintering</i> .....	54
Gambar 4. 10	Pemetaan unsur pada membran membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 (a) metode <i>pre-sintering</i> dan (b) metode <i>post-sintering</i> .....	55
Gambar 4. 11	Membran datar BSCF 6482 (a1) sebelum sintering, (a2) sesudah sintering, dan (a3) hasil uji tetes air serta membran datar BSCF 7382 (b1) sebelum sintering, (b2) sesudah sintering, dan (b3) hasil uji tetes air .....	56
Gambar 4. 12	Morfologi permukaan membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 .....	58
Gambar 4. 13	Membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 (a1) sebelum kalsinasi dan (a2) sesudah kalsinasi serta membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382 (b1) sebelum kalsinasi dan (b2) sesudah kalsinasi .....	59
Gambar 4. 14	Pengamatan morfologi permukaan membran datar (a) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 dan (b) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382.....	59
Gambar 4. 15	Penampang lintang membran datar (a1) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 , (a2) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382 , pemetaan unsur (b1) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 dan (b2) $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382 .....	61
Gambar 4. 16	Fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 pada variasi suhu reaksi .....	63
Gambar 4. 17	Fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 pada variasi laju alir helium .....	65

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

## DAFTAR TABEL

Tabel 3. 1	Massa stoikhiometri reaktan untuk sintesis 30 gram oksida perovskit $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) .....	34
Tabel 4. 1	Warna reaktan sintesis oksida perovskit BSCF xx82.....	41
Tabel 4. 2	Perubahan dimensi pada membran BSCF 5582 setelah sintering suhu 1150 °C.....	49
Tabel 4. 3	Data susut bakar membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 .....	56

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Industri petrokimia membutuhkan cadangan dan pasokan oksigen. Sementara itu, sumber oksigen di bumi tersedia dalam jumlah melimpah bercampur dengan gas lainnya, khususnya nitrogen sehingga perlu dilakukan pemisahan oksigen dari udara.

Ada beberapa teknologi pemisahan oksigen dari udara digunakan untuk memenuhi kebutuhan oksigen di industri seperti adsorpsi gas, destilasi kriogenik, dan pemisahan dengan membran (Chen dkk., 2015). Destilasi kriogenik menjadi teknologi yang banyak digunakan saat ini karena memiliki resiko yang kecil saat diaplikasikan dalam skala industri. Namun dalam penggunaannya, destilasi kriogenik membutuhkan biaya operasi yang cukup tinggi karena dioperasikan pada suhu yang rendah dan tekanan yang tinggi (Yacou dkk., 2011). Disisi lain, teknologi pemisahan oksigen dengan membran MIEC (*Mixed ionic-electronic conducting*) banyak dikembangkan, teknologi ini dianggap mampu menggantikan teknik destilasi kriogenik dalam pemisahan oksigen dari udara.

Membran MIEC dapat digunakan dalam berbagai proses industri yang membutuhkan cadangan oksigen murni dalam jumlah tetap (Bouwmesster, 2003). Membran MIEC memiliki kelebihan yaitu memiliki selektivitas hingga 100% pada suhu tinggi hingga mencapai suhu 700°C (Yacou dkk., 2011). Membran MIEC mampu mengalirkan ion oksigen dan elektron secara bersamaan sehingga tidak memerlukan elektroda tambahan maupun aliran listrik dari luar (Teraoka dkk., 1985). Hal ini berbeda dengan sel bahan bakar oksida dan pompa oksida yang memerlukan aliran listrik tambahan (Bouwmesster, 2003) agar terjadi hantaran oksigen. Selain beberapa kelebihan diatas, membran MIEC juga dapat diaplikasikan secara langsung dalam reaktor sebagai katalis untuk beberapa proses kimia, seperti reaktor membran dalam proses oksidasi parsial hidrokarbon ringan serta pemecahan air untuk produksi hidrogen dan produksi

gas sintetik sebagai bahan baku sintesis ammonia dan bahan bakar cair (Cai dkk., 2016).

Banyak material yang dapat digunakan sebagai bahan baku pembuatan membran MIEC antara lain, perovskit ( $ABO_3$ ), *Fluorites* ( $AO_2$ ), *Brownmillerites* ( $A_2B_2O_5$ ), *Ruddles and popper series* ( $A_{n+1}B_nO_{3n+1}$ ) dan  $Sr_4Fe_{6-x}Co_xO_3$ . Salah satu material MIEC yang memiliki konduktivitas yang baik adalah perovskit (Rachadel, 2014). Membran keramik perovskit berbasis kobalt seperti SCF ( $SrCo_yFe_{1-y}O_{3-\delta}$ ) memiliki fluks oksigen yang lebih tinggi dibandingkan dengan membran keramik tanpa kobalt namun memiliki stabilitas struktur yang rendah ketika digunakan dalam jangka panjang (Faraji dkk., 2010). Perbaikan sifat perovskit SCF dilakukan dengan penambahan kation A dengan ukuran ion yang lebih besar seperti  $Ba^{2+}$ . Babhakhani dkk. (2011) melaporkan substitusi parsial  $Sr^{2+}$  di posisi kation A dengan  $Ba^{2+}$  menunjukkan adanya peningkatan stabilitas membran yang dihasilkan dengan batas substitusi  $x < 0,7$ . Selain itu, Faraji dkk. (2010) melaporkan, BSCF mampu melepaskan oksigen dalam jumlah yang lebih banyak dibandingkan dengan SCF terlebih dilakukan perbandingan pada suhu rendah. Hingga saat ini, BSCF menjadi salah satu material MIEC yang banyak mendapat perhatian karena komposisinya memiliki fluks oksigen yang tinggi (Wang dkk., 2018).

Dalam aplikasinya sebagai membran penghantar oksigen, fluks oksigen menjadi salah satu parameter utama untuk menentukan potensi membran MIEC dalam dunia industri. Fluks oksigen adalah banyaknya oksigen yang mampu dihantarkan dalam satuan waktu dan satuan luas. Berdasarkan proses permeasi oksigen yang terjadi, besarnya fluks oksigen sangat dipengaruhi oleh reaksi pada permukaan membran dan difusi ion (Li dkk., 2015). Ketika ketebalan membran sudah mendekati nilai ketebalan kritis, maka fluks oksigen lebih dominan dipengaruhi oleh reaksi pertukaran oksigen di permukaan membran (Hayamizu dkk., 2014). Kenaikan laju permeasi oksigen dapat dicapai dengan memodifikasi permukaan membran melalui dua cara yaitu memperluas luas permukaan membran tempat terjadinya reaksi

pertukaran oksigen dan mempercepat reaksi pertukaran oksigen yang terjadi di permukaan membran dengan menambahkan katalis reaksi reduksi oksigen (*Oxygen Reduction Reaction/ORR*) atau reaksi perubahan oksigen (*Oxygen Evolution Reaction/OER*) yang terjadi selama proses pertukaran oksigen (Li dkk., 2015).

Modifikasi membran MIEC dengan melapiskan katalis telah banyak dilakukan untuk meningkatkan kinerja membran MIEC. Logam mulia merupakan salah satu material yang dapat digunakan sebagai katalis reaksi pertukaran oksigen karena memiliki nilai konduktivitas elektronik yang baik, sehingga mampu menurunkan entropi dan entalpi reaksi pertukaran oksigen pada permukaan membran (Wang dkk., 2017). Pelapisan membran MIEC dengan logam mulia telah dilaporkan oleh Leo dkk.(2009) melalui penambahan lapisan Ag pada membran BSCF *Hollow Fiber*. Penambahan lapisan Ag terbukti mampu meningkatkan fluks oksigen hingga 100% pada suhu 700°C dibandingkan membran tanpa modifikasi. Meskipun penggunaan katalis logam mulia mampu meningkatkan fluks oksigen membran MIEC, modifikasi ini dinilai kurang ekonomis sebab harga material pelapis yang mahal. Disisi lain, oksida logam transisi (Co, Ni, Fe) dapat digunakan sebagai katalis reaksi pertukaran oksigen karena memiliki reaktivitas dan stabilitas yang juga baik. Salah satunya adalah kobalt oksida yang terbukti memiliki kekosongan oksigen yang terkontrol sehingga memiliki performansi katalis OER yang baik (Xu dkk., 2018).

Pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar BSCF telah dilaporkan oleh Li dkk. (2015). Pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran BSCF dilakukan melalui metode hidrotermal. Metode ini mampu menempelkan nanorod  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF tanpa adanya distribusi partikel berlebih pada lapisan antarmuka sehingga nilai fluks oksigen yang dihasilkan meningkat. Meskipun demikian, metode yang dilakukan tidak sederhana serta memerlukan waktu dan energi yang besar sehingga tidak efisien ketika diaplikasikan dalam skala industri. Selanjutnya pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar BSCF dilakukan oleh Wang dkk. (2017) dengan metode *dip-coating*. Metode ini mampu melapiskan nanopartikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dengan pelarut yang relatif

sederhana namun masih memerlukan waktu reaksi yang lama sehingga masih dinilai kurang efektif.

Pembaharuan metode lain dalam proses pelapisan membran BSCF diperlukan untuk mendapatkan metode lain yang lebih efisien terlebih dalam penggunaan skala industri. Metode lain telah dilaporkan oleh Harmelia (2018) dengan bahan perekat amilum. Metode ini mampu melapiskan NiO-CeO<sub>2</sub> pada permukaan membran LSCF. Metode ini lebih mudah diaplikasikan dalam proses pelapisan membran serta penggunaan bahan perekat amilum yang sederhana dan relatif tidak berbahaya bagi lingkungan menjadikan metode pelapisan ini menjadi salah satu metode yang dapat diaplikasikan dalam proses modifikasi permukaan membran.

## 1.2 Rumusan Masalah

Pelapisan katalis Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> menjadi salah satu modifikasi yang dapat dilakukan untuk meningkatkan fluks oksigen membran BSCF. Dalam hal ini, metode pelapisan membran dengan bahan perekat amilum merupakan salah satu metode yang efektif dan sederhana dalam pelapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ke permukaan membran datar. Namun demikian, teknik yang tidak sesuai dalam melapiskan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dapat menyebabkan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> terdifusi ke dalam badan membran sehingga menyebabkan perubahan komposisi oksida perovskit Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>Co<sub>0,8</sub>Fe<sub>0,2</sub>O<sub>3-δ</sub> ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) atau BSCF xx82 yang dapat menurunkan kinerja permeabilitas oksigen. Oleh karena itu, perlu dilakukan optimasi metode yang paling sesuai untuk pelapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dengan perekat amilum agar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> tidak terdifusi ke dalam badan membran sehingga diperoleh membran datar BSCF xx82 dengan sebaran Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> yang merata pada permukaan membran.

### 1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini adalah:

1. Mendapatkan metode yang paling baik dalam pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dengan bahan perekat amilum untuk membentuk membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) beserta morfologi yang dihasilkan
2. Pengaruh penambahan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran BSCF terhadap fluks oksigen yang dihasilkan.

### 1.4 Batasan Penelitian

Membran yang digunakan dalam penelitian ini adalah membran datar  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) dengan material pelapis  $\text{Co}_3\text{O}_4$ .

### 1.5 Manfaat Penelitian

Penelitian ini dapat memberikan informasi mengenai metode pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) yang praktis dan efektif dalam membentuk membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) serta karakter (morfologi permukaan dan penampang lintang) membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ). Selain itu, penelitian ini dapat memberikan informasi mengenai peningkatan fluks oksigen membran datar yang dihasilkan.

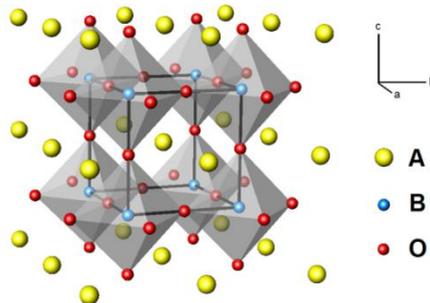
*“Halaman ini sengaja dikosongkan”*

## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

#### 2.1 Oksida Perovskit

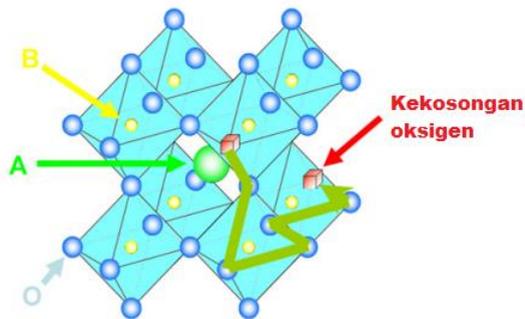
Senyawa oksida perovskit adalah bagian dari kelompok keramik kristalin yang memiliki struktur kubus dan didefinisikan dengan rumus molekul umum  $ABO_3$  (Leo dkk., 2011). Dimana valensi total A dan B sama dengan 6 sesuai dengan total valensi negatif dari anion oksigen. Oksida perovskit dapat memiliki rumus molekul  $A^{2+}B^{4+}O_3$ ,  $A^{1+}B^{5+}O_3$ , atau  $A^{3+}B^{3+}O_3$  (Sunarso dkk., 2008). Pada kenyataannya oksida perovskit banyak muncul dalam struktur  $ABO_{3\pm\delta}$  dimana  $\delta$  menunjukkan defisiensi/kekurangan atau penambahan anion oksigen akibat perubahan total jumlah valensi kation A dan B. Struktur perovskit ideal berbentuk *cubic close packed* (Sunarso dkk., 2017). Kation A menempati pusat kubus perovskit dengan mengikat 12 oksigen. Kation A biasanya terdiri dari unsur golongan alkali dan alkali tanah seperti La, Na, Ca, Sr ataupun Ba (Athayde dkk., 2016). Sementara kation B umumnya ditempati oleh unsur dari golongan logam transisi yang memiliki ukuran lebih kecil dibandingkan kation A (Utomo, 2014). Struktur sel satuan (*unit cell*) oksida perovskit ideal  $ABO_3$  digambarkan pada Gambar 2.1.



Gambar 2. 1 Struktur oksida perovskite ideal  $ABO_3$  (Artini, 2017)

Struktur perovskit yang ideal berupa  $ABO_3$  sesungguhnya tidak memiliki sifat konduktivitas ionik. Namun substitusi parsial

kation A dan kation B mampu memberikan defek berupa kekosongan oksigen yang dapat menimbulkan sifat konduktivitas ion oksigen seperti digambarkan pada Gambar 2.2. Besar fluks oksigen sangat ditentukan oleh konsentrasi kekosongan oksigen dalam struktur perovskit, hal ini menjadikan substitusi parsial kation A maupun kation B menjadi salah satu cara yang banyak dilakukan peneliti untuk meningkatkan performa membran perovskit. Ketika material perovskit telah mengalami substitusi parsial kation baik kation A maupun kation B maka rumus strukturnya berubah menjadi  $A_xA'_{1-x}B_yB'_{1-y}O_{3-\delta}$ . Dimana x dan y adalah banyaknya kation yang tersubstitusi dengan rentang nilai antara 0 hingga 1 sementara  $\delta$  adalah jumlah kekosongan oksigen. Komposisi perovskit yang paling banyak diteliti hingga saat ini adalah  $Ba_{1-x}Sr_xCo_{y-1}Fe_yO_{3-\delta}$  (BSCF) dan  $La_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-\delta}$  (LSCF) (Athayde dkk., 2016).



Gambar 2.2 Struktur Oksida perovskit dengan kekosongan oksigen (Zhou dkk., 2009)

Substitusi parsial kation dalam struktur perovskit memiliki batas tertentu. Apabila substitusi melewati batasnya maka struktur perovskit dapat terdistorsi dari bentuk kubus ke bentuk lainnya. Batas ini dapat didekati oleh faktor toleransi yang dikemukakan oleh Goldschmidt pada persamaan 2.1. Faktor toleransi untuk substitusi parsial kation dalam struktur perovskit adalah 0,8-1,0.

$$t_{IR} = (R_A + R_O) / \sqrt{2}(R_B + R_O) \quad (2.1)$$

dimana  $R_A$ ,  $R_B$ , dan  $R_O$  secara berturut-turut adalah jari-jari ion A, B dan oksigen (Artini, 2017).

### 2.1.1 Substitusi Parsial

Substitusi kation A dan B dalam struktur perovskit baik substitusi parsial maupun total dapat menyebabkan perubahan sifat dari perovskit. Umumnya peneliti melakukan substitusi parsial baik pada kation A dan/atau kation B pada struktur perovskit untuk membentuk kekosongan oksigen guna meningkatkan fluks oksigen yang dihasilkan. Hal ini karena kekosongan oksigen sangat mempengaruhi sifat konduktivitas ionik pada membran perovskit. Semakin besar kekosongan oksigen yang ada pada struktur perovskit, maka semakin besar pula konduktivitas ioniknya (Park dkk., 2008). Selain itu substitusi parsial kation pada membran perovskit juga digunakan untuk meningkatkan stabilitas material yang dihasilkan.

Substitusi parsial menjadi topik yang banyak dibahas oleh para peneliti. Kajian tentang substitusi parsial pun telah lama dilakukan. Misalnya Teraoka dkk. (1985) melakukan kajian tentang pengaruh besarnya nilai  $x$  dan  $y$  pada material  $La_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-\delta}$  terhadap fluks oksigen yang dihasilkan. Hasilnya menunjukkan bahwa pada nilai  $y$  tetap laju permeasi oksigen meningkat seiring dengan meningkatnya nilai  $x$ , sehingga substitusi parsial  $Sr^{2+}$  terhadap  $La^{3+}$  mampu meningkatkan besarnya fluks oksigen yang dihasilkan. Namun pada nilai  $x$  tetap, laju permeasi oksigen cenderung naik ketika nilai  $y$  semakin turun, hal ini mungkin disebabkan sifat  $Co^{2+}$  yang lebih oksidatif dibandingkan  $Fe^{2+}$ . Pada penelitian ini dilaporkan bahwa penambahan kation  $Sr^{2+}$  dan  $Co^{2+}$  dapat meningkatkan fluks oksigen yang dihasilkan.

Selain pengaruhnya terhadap fluks oksigen, pengaruh substitusi parsial kation A maupun B terhadap stabilitas membran juga dilakukan. Penelitian mengenai pengaruh substitusi kation A pada material oksida perovskit  $SrCo_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$  telah dilakukan oleh Babakhani dkk.(2010). Babakhani dkk.(2010) yang melaporkan bahwa substitusi kation  $Sr^{2+}$  pada material perovskit  $SrCo_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$  dengan ion logam yang memiliki valensi lebih

besar seperti  $\text{La}^{3+}$  dapat meningkatkan stabilitas fasanya namun justru menurunkan fluks oksigen yang dihasilkan karena turunnya konsentrasi kekosongan oksigen. Namun substitusi parsial kation  $\text{Sr}^{2+}$  dengan kation lain yang memiliki valensi sama namun jari-jari ionnya lebih besar seperti  $\text{Ba}^{2+}$ , mampu meningkatkan stabilitas struktur secara signifikan serta dapat meningkatkan laju permeasi oksigennya pula. Penelitian-penelitian tersebut menunjukkan bahwa substitusi kation A dan B memegang peranan penting dalam pembentukan sifat perovskit.

### 2.1.2 $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ (BSCF) sebagai Material

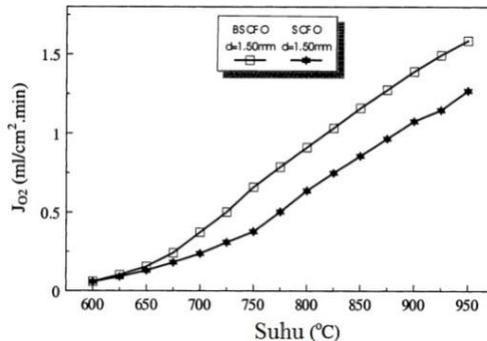
#### Penghantar Ion Oksigen

Membran keramik sebagai penghantar ion oksigen dikelompokkan dalam dua jenis material, yaitu membran keramik berbasis kobalt dan membran keramik berbasis tanpa kobalt. Membran keramik berbasis kobalt, seperti  $\text{SrCo}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$  (SCF), memiliki fluks oksigen yang lebih tinggi dibandingkan dengan membran keramik berbasis tanpa kobalt. Meskipun demikian, membran keramik berbasis kobalt memiliki stabilitas struktur yang rendah ketika digunakan dalam jangka panjang (Faraji dkk., 2010).

Membran penghantar ion oksigen yang ideal harus memiliki nilai fluks oksigen yang tinggi dan kestabilan struktur kimia pada suhu dan tekanan parsial oksigen yang tinggi (Shao dkk., 2001a ).  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF) telah dilaporkan menjadi salah satu material pemisah oksigen yang menjanjikan dimana dapat diaplikasikan pada reaktor yang memiliki *driving force* akibat adanya perbedaan tekanan parsial oksigen tanpa membutuhkan rangkaian listrik tambahan. Meskipun dalam penggunaannya diperlukan suhu yang tinggi untuk mencapai suhu reaksi permeasi oksigen, namun material ini tetap menjadi salah satu material yang sangat baik dibandingkan membran polimer dalam hal selektivitas dan stabilitas termalnya (Teraoka dkk., 1985). Pada perkembangan selanjutnya, meskipun LSCF memiliki stabilitas yang baik, namun fluks permeasi yang dimilikinya tidak cukup kuat untuk menyaingi proses pemisahan oksigen melalui metode

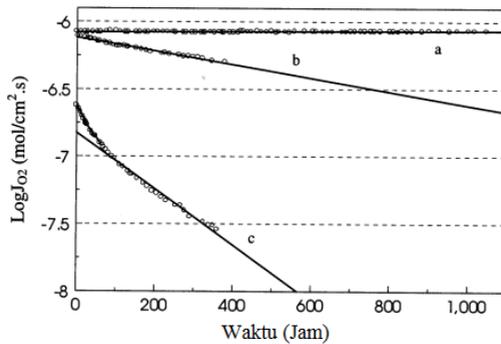
tradisional *autothermal reforming*. Substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  terhadap  $\text{La}^{3+}$  kemudian dilakukan untuk meningkatkan nilai fluks permeasi oksigen. Peningkatan substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  terhadap  $\text{La}^{3+}$  pada kation A dapat meningkatkan jumlah oksigen non stoikiometri sehingga meningkatkan kekosongan oksigen dalam membran yang berakibat meningkatnya fluks oksigen yang dihasilkan. Namun, kestabilan SCF dinilai rendah karena fasa *brown-millerite* telah terbentuk pada suhu 1073 K pada tekanan parsial oksigen rendah (McIntosch dkk., 2006).

Perbaikan sifat pada material oksida perovskit  $\text{SrCo}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_{3-\delta}$  (SCF) kemudian dilakukan dengan melakukan substitusi parsial kation pada kation A. Substitusi parsial kation  $\text{Sr}^{2+}$  dengan kation lain yang memiliki valensi sama (2+) namun dengan jari-jari ion yang lebih besar seperti  $\text{Ba}^{2+}$  dapat meningkatkan stabilitas fasa membran serta fluks oksigen yang dihasilkan. Seperti yang dilaporkan oleh Shao dkk. (2001 b), Shao melakukan substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  dengan  $\text{Ba}^{2+}$ . Hasilnya menunjukkan, laju permeasi oksigen membran BSCF meningkat pada hampir semua suhu reaksi dibandingkan membran SCF. Laju permeasi oksigen tertinggi mencapai  $1.6 \text{ ml}\cdot\text{cm}^{-2}$  pada suhu  $950^\circ\text{C}$ . Perbandingan laju permeasi oksigen pada membran BSCF dan membran SCF disajikan pada Gambar 2.3.



Gambar 2. 3 Perbandingan permeasi oksigen membran BSCF dan SCF (Shao dkk ., 2001).

Selain dapat meningkatkan laju permeasi oksigen, substitusi  $Ba^{2+}$  pada kation  $Sr^{2+}$  mampu meningkatkan stabilitas fasa membran pula. Shao dkk. (2001 b) membuktikan bahwa membran BSCF yang dihasilkan mampu mempertahankan laju permeasi oksigennya sebesar  $1,1-1,2 \text{ mL.cm}^{-2}$  pada suhu  $850^\circ\text{C}$  selama 1000 jam. Uji permeasi oksigen pada membran BSCF dalam fungsi waktu ditunjukkan pada Gambar 2.4.



Gambar 2.4 Fluks permeas oksigen pada BSCF (a)  $850^\circ\text{C}$  dalam atmosfer He, (b)  $825^\circ\text{C}$  dalam atmosfer udara dan (c)  $750^\circ\text{C}$  dalam atmosfer udara (Shao dkk., 2001 b).

Sifat material oksida perovskit  $Ba_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-\delta}$  (BSCF) yang memiliki fluks oksigen yang tinggi serta stabilitas struktur yang baik menjadikan oksida perovskit BSCF menjadi salah satu material yang banyak digunakan sebagai membran MIEC.

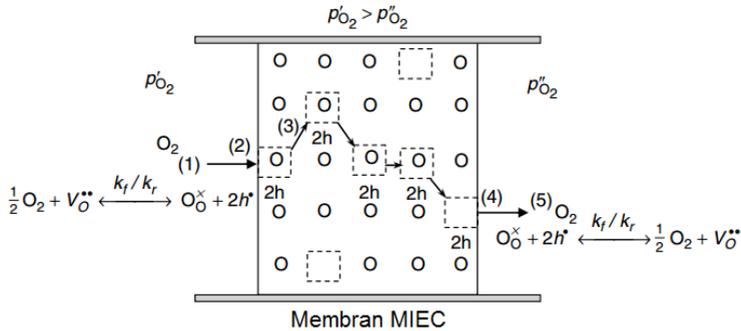
## 2.2 Membran *Mixed Ionic and Electronic Conductivity* (MIEC)

Teknologi pemisahan oksigen berbasis membran pada dasarnya terdiri dari dua jenis, yaitu membran dengan sifat konduktivitas ion saja dan membran dengan sifat konduktivitas ion dan elektrik sekaligus. Oksigen mampu terpisahkan dari udara karena oksigen terpermesi atau teralirkan pada kisi kristal dalam

membran melalui kekosongan oksigen yang dimilikinya. Elektron perlu dialirkan dalam membran dengan arah alir berlawanan untuk menjaga agar permeasi oksigen terus berlangsung secara kontinyu (Sunarso dkk., 2008).

Membran *Mixed Ionic and Electronic Conductivity* (MIEC) adalah membran yang mampu mengalirkan ion oksigen maupun elektron secara langsung. Dalam penggunaannya, membran MIEC tidak memerlukan tambahan elektroda maupun aliran listrik, yang berbeda jika dibandingkan dengan sel bahan bakar oksida lain (Bouwmesster., 2003). Material MIEC memisahkan oksigen dari udara dengan cara permeasi oksigen melalui kekosongan pada struktur kristalnya. Proses ini disebut dengan semi-permeasi oksigen. Oksigen dapat terpermeasi di dalam membran karena adanya tekanan atau *driving force* akibat perbedaan tekanan parsial oksigen pada kedua sisi membran. Proses permeasi oksigen ini menyebabkan membran MIEC mampu menghasilkan oksigen murni dengan selektivitas mencapai 100% (Geffroy dkk., 2013).

Membran MIEC mampu mengalirkan oksigen ketika memiliki perbedaan tekanan parsial oksigen pada suhu tinggi. Pada kondisi ini, oksigen akan terpermeasi dari sisi membran bertekanan parsial oksigen tinggi menuju sisi membran bertekanan parsial oksigen rendah. Gambar 2.5 menampilkan skema proses permeasi oksigen yang terjadi dalam tahapan berikut ini : (1) difusi molekul oksigen dari aliran gas umpan menuju ke permukaan membran pada sisi tekanan parsial oksigen yang tinggi, (2) reaksi antara oksigen dengan kekosongan oksigen dalam membran pada sisi tekanan parsial oksigen tinggi, (3) difusi fasa ruah kekosongan oksigen sepanjang membran, (4) reaksi antara kisi oksigen dan kekosongan elektron pada permukaan membran dengan tekanan oksigen parsial rendah, (5) pemindahan oksigen dari permukaan membran menuju aliran gas penyapu. Mekanisme transport oksigen menunjukkan bahwa fluks oksigen dipengaruhi oleh dua faktor besar yaitu difusi ion oksigen didalam membran dan reaksi pertukaran permukaan yang terjadi pada kedua sisi membran (Tan dan Li, 2013)



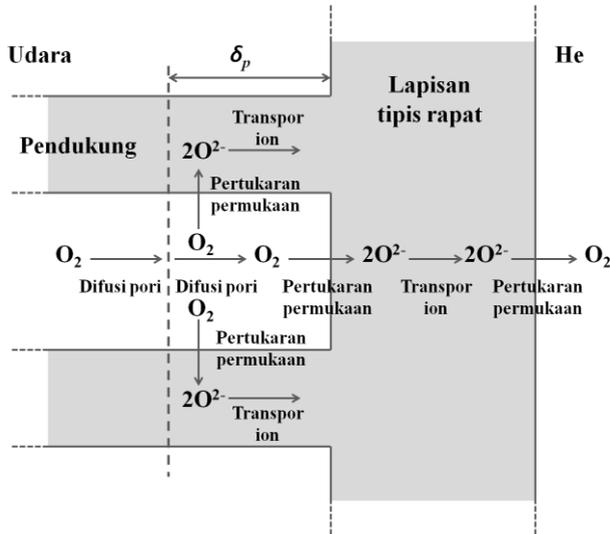
Gambar 2.5 Mekanisme transport oksigen pada membran MIEC (Tan dan Li, 2013)

Beberapa faktor penting yang menentukan performa dari membran MIEC adalah besarnya fluks oksigen dan stabilitas membran. Fluks oksigen menyatakan jumlah oksigen yang terpermeasi atau melewati membran tiap satuan waktu dan tiap satuan luas. Fluks oksigen dapat dilihat dari banyaknya fraksi oksigen yang terbaca dalam produk gas yang dihasilkan dengan kromatografi gas (*Gas Chromatography/GC*) (Chen, 2014).

### 2.2.1 Membran Rapat Asimetris

Beberapa pendekatan yang telah dilakukan untuk meningkatkan performa membran pemisah oksigen adalah pembuatan membran asimetris. Pembuatan membran asimetris dilakukan untuk menurunkan ketebalan membran. Membran asimetris terdiri lapisan tipis membran rapat dan lapisan pendukung berpori. Dalam perkembangannya membran asimetris memiliki dua jenis pengembangan yaitu transfer oksigen dari lapisan tipis rapat ke lapisan pendukung berpori (*Dense to support*, DS) dan transfer oksigen dari lapisan pendukung berpori ke lapisan tipis rapat (*Support to dense*, SD). Pada membran asimetris SD, oksigen terdifusi melewati pori lapisan pendukung dalam dua cara yaitu transfer molekul oksigen melalui pori

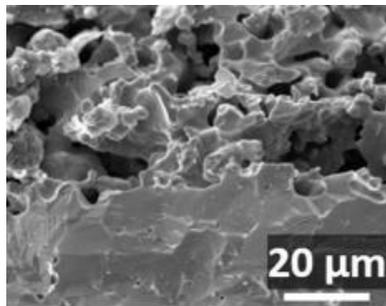
lapisan pendukung dan transfer ion oksigen melalui dinding lapisan pendukung seperti yang digambarkan pada Gambar 2.6. Ion oksigen kemudian terdifusi melalui lapisan tipis rapat menuju ke sisi lain membran (Chang dkk., 2008).



Gambar 2. 6 Mekanisme transfer oksigen pada membran asimetris SD (Chang dkk., 2008)

Salah satu metode termudah untuk pembuatan membran asimetris adalah dengan metode *dry pressing* seperti yang dilakukan oleh Rachadel dkk. (2017). Metode *dry pressing* dilakukan dengan membuat lapisan pendukung berpori terlebih dahulu. Lapisan berpori dibentuk dengan menekan campuran 20% w/w karbon aktif sebagai bahan pembentuk pori dan oksida perovskit BSCF secara manual, kemudian ditambahkan serbuk oksida perovskit BSCF diatas lapisan berpori lalu diberi tekanan kembali. Membran asimetris yang dihasilkan kemudian dipanaskan pada suhu 500°C untuk menghilangkan karbon aktif didalam membran. Selanjutnya membran asimetris disinter pada suhu 800 dan 1150°C. Metode ini mampu membentuk lapisan

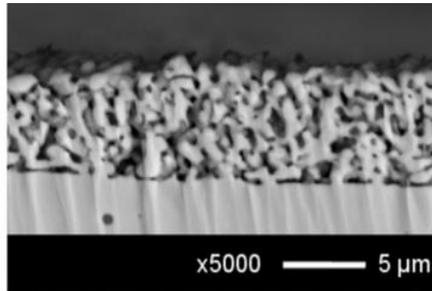
pendukung berpori pada membran rapat BSCF dengan lapisan antar muka yang terlihat jelas seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.7. Karbon aktif sebagai bahan pembentuk pori, terlihat mampu membentuk pori yang tidak homogen pada lapisan pendukung dimana sebagian besar pori merupakan pori yang saling terhubung satu sama lain. Hasil penambahan lapisan pendukung BSCF berpori pada membran rapat BSCF mampu meningkatkan fluks oksigen yang dihasilkan. Pada suhu 850°C membran asimetris dengan lapisan rapat (500  $\mu\text{m}$ ) dan lapisan berpori (40  $\mu\text{m}$ ) menghasilkan fluks oksigen 42% lebih tinggi dibandingkan membran dengan hanya lapisan rapat.



Gambar 2. 7 Penampang lintang membran asimetris BSCF yang disiapkan dengan metode *dry pressing* (Rachadel dkk., 2017)

Metode lain dilaporkan oleh Hayamizu dkk. (2014). Hayamizu dkk. (2014) melaporkan pembuatan lapisan pendukung berpori dengan metode *screen printing* pada permukaan membran datar BSCF yang telah disiapkan dengan metode *tape casting*. Metode *screen printing* dilakukan dengan melapiskan campuran serbuk BSCF dan pelarut dengan ratio 1:1 pada permukaan membran datar BSCF. Metode ini dilakukan untuk membentuk lapisan pendukung dengan ketebalan yang seragam pada permukaan membran. Hasilnya terlihat pada Gambar 2.8 dimana

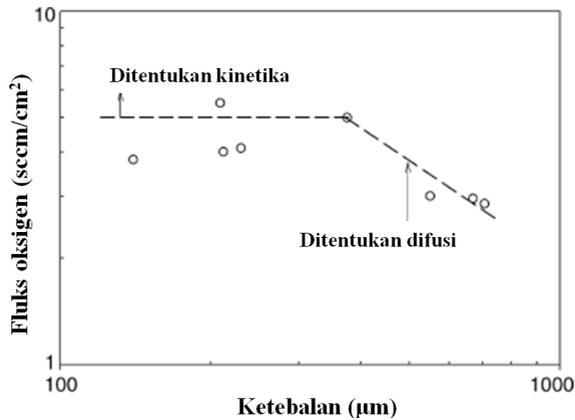
lapisan pendukung dengan ketebalan seragam sebesar  $6.5 \mu\text{m}$  tercetak pada permukaan membran BSCF yang memiliki ketebalan  $120 \mu\text{m}$ . Pembuatan membran asimetris ini mampu menghasilkan laju permeasi oksigen 3,6 kali lebih besar dibandingkan dengan membran rapat dengan ketebalan yang sama tetapi tidak memiliki lapisan berpori.



Gambar 2. 8 Penampang lintang lapisan pendukung berpori yang disiapkan melalui metode *screen printing* (Hayamizu dkk., 2014)

### 2.2.2 Pelapisan Permukaan Membran MIEC

Dalam proses permeasi oksigen pada membran MIEC terdapat dua faktor utama yang mempengaruhi fluks oksigen yakni difusi fasa ruah dan reaksi pertukaran permukaan. Pengaruh faktor tersebut terhadap besarnya fluks oksigen tergantung pada ketebalan membran, seperti digambarkan pada Gambar 2.9. Ketika ketebalan membran diturunkan, fluks oksigen tidak lagi dipengaruhi oleh proses difusi tetapi reaksi pertukaran di permukaan (Sunarso dkk., 2008). Pada umumnya modifikasi dilakukan dengan menambahkan lapisan pendukung berpori dengan fluks oksigen lebih tinggi ataupun menambahkan lapisan katalis untuk mempercepat proses reaksi pertukaran dipermukaan.

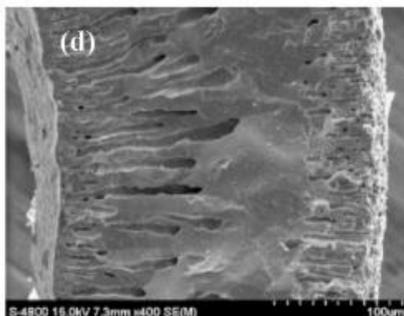


Gambar 2.9 Faktor penentu fluks oksigen membran pada berbagai ketebalan membran (Sunarso dkk., 2008).

Perbedaan fasa antara lapisan pendukung dan membran rapat menyebabkan metode pelapisan membran menjadi salah satu hal yang penting untuk diteliti. Peningkatan kompatibilitas membran yang dihasilkan dapat dilakukan dengan memilih lapisan pendukung dan lapisan membran rapat dengan sifat yang hampir sama. Penurunan perbedaan sifat antara lapisan pendukung dan lapisan membran rapat dapat menghindarkan peregangan pada membran yang dihasilkan sehingga membran dapat menempel dengan sempurna (Schulze-Kuppers dkk., 2013).

Park dkk. (2017) melaporkan pelapisan oksida perovskit LSTF pada permukaan membran *hollow fiber* BSCF. Penggunaan logam transisi dalam material perovskit menunjukkan nilai kestabilan yang baik, hal ini menjadi alasan penggunaan lapisan LSTF pada material BSCF yang dikenal memiliki fluks oksigen yang tinggi namun kestabilan yang rendah. Pelapisan membran dilakukan dengan metode *single dip-coating*. Metode ini dilakukan dengan mengoleskan suspensi LSTF pada permukaan membran *hollow fiber* BSCF yang disiapkan dengan metode inversi fasa. Hasil SEM pada membran ditunjukkan pada Gambar

2.10, dimana terlihat terdapat lapisan rapat BSCF yang diapit oleh lapisan *finger like* pada bagian luar dan bagian dalam. Lapisan *finger like* pada bagian luar adalah lapisan LSTF sementara lapisan *finger like* dalam adalah BSCF.



Gambar 2. 10 Hasil SEM *cross section* pada membran BSCF *hollow fiber* berlapis LSTF (Park dkk., 2017)

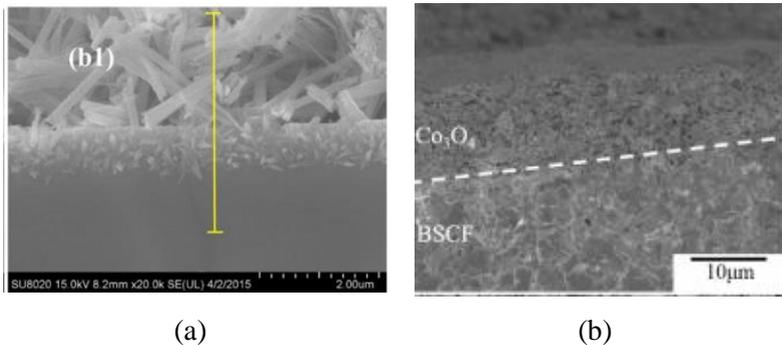
Selain pelapisan dengan material perovskit dengan fluks oksigen lebih tinggi yang memiliki kompatibilitas hampir sama, modifikasi juga dapat dilakukan dengan penambahan katalis ORR/OER pada permukaan membran. Meskipun penggunaan katalis ORR/OER memiliki kompatibilitas yang berbeda dengan membran rapat oksida perovskit, namun penggunaan metode yang tepat dapat menghasilkan membran lapisan katalis yang menempel dengan baik. Pelapisan membran MIEC dengan katalis ORR/OER diawali dengan penggunaan logam mulia. Logam mulia memiliki kemampuan konduksi elektronik yang baik sehingga mampu menurunkan entropi dan entalpi reaksi pertukaran oksigen pada permukaan membran. Pelapisan logam perak (Ag) pada permukaan membran BSCF *hollow fiber* telah dilaporkan oleh Leo dkk. (2009) dengan metode *dip-coating*. Metode ini dilakukan melalui pencelupan membran BSCF *hollow fiber* kedalam larutan  $\text{AgNO}_3$  dan dilanjutkan kalsinasi pada suhu  $800^\circ\text{C}$ . Hasilnya menunjukkan partikel Ag berhasil menempel pada permukaan membran BSCF meskipun sebaran partikelnya tidak

homogen. Modifikasi pada membran *hollow fiber* BSCF mampu meningkatkan fluks oksigen terutama pada suhu reaksi dibawah 850°C.

Penggunaan logam mulia sebagai material pelapis membran MIEC mampu meningkatkan fluks oksigen membran, namun memiliki harga yang mahal sehingga membuat pelapisan ini tidak ekonomis. Perkembangan selanjutnya dilakukan dengan material pelapis berupa oksida logam transisi. Logam transisi memiliki sifat konduktivitas ionik oksigen dan elektronik yang tinggi serta sifat katalitik yang baik menjadikan oksida logam transisi menjadi salah satu material pelapis yang berpotensi (Wang dkk., 2017). Salah satu oksida logam transisi yang banyak diteliti adalah  $\text{Co}_3\text{O}_4$ , oksida kobalt terbukti memiliki kekosongan oksigen yang terkontrol sehingga memiliki performansi OER yang baik.

Pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar BSCF telah dilaporkan oleh Li dkk. (2015) dengan metode hidrotermal. Metode pelapisan ini mampu menempelkan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  berbentuk *nanorod* pada permukaan membran datar BSCF. Membran datar BSCF yang digunakan disiapkan dengan metode *dry pressing*. Penumbuhan *nanorod*  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dilakukan dengan pencelupan membran datar BSCF pada larutan prekursor  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Prekursor tersebut disiapkan dengan pelarutan  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_4\text{F}$  dan  $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$  ke dalam air. Membran datar yang berada didalam larutan prekursor kemudian direaksikan secara hidrotermal pada suhu 100°C selama 10 jam, selanjutnya dilakukan kalsinasi pada suhu 700, 800, 900°C selama 3 jam untuk menguatkan penempelan *nanorod*  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran. Hasilnya metode ini berhasil menempelkan *nanorod*  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF seperti yang disajikan pada Gambar 2.11. Tidak ada difusi  $\text{Co}_3\text{O}_4$  kedalam membran dengan ditandai adanya lapisan antar muka yang jelas antara lapisan pendukung dan lapisan rapat membran, hasil ini juga didukung oleh hasil EDX dimana tidak ada penambahan persebaran unsur pada lapisan membran rapat. Modifikasi yang dilakukan pada membran BSCF terbukti dapat meningkatkan fluks oksigen

membran dimana fluks oksigen meningkat 11,5 kali pada suhu 600°C namun peningkatan fluks oksigen menurun seiring dengan meningkatnya suhu reaksi. Meskipun demikian metode penempelan ini membutuhkan pelarut yang tidak sederhana dan suhu yang tinggi serta waktu yang cukup lama sehingga metode ini dinilai tidak efektif untuk diaplikasikan dalam skala besar.



Gambar 2. 11 Penampang lintang *nanorod*  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF dengan metode (a) hidrotermal (Li dkk., 2015) dan (b) *dip-coating* (Wang dkk., 2017)

Perkembangan pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  selanjutnya dilaporkan oleh Wang dkk. (2017). Wang dkk. (2017) melaporkan pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar BSCF melalui metode *Dip-coating*. Membran BSCF yang digunakan disiapkan dengan metode *dry pressing*. Metode ini memerlukan waktu lebih singkat dibandingkan metode hidrotermal yang dilaporkan oleh Li dkk. (2015). Metode ini dilakukan dengan mencelupkan membran datar BSCF kedalam suspensi pelapis  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Suspensi pelapis disiapkan dengan melarutkan kobalt nitrat kedalam etanol. Membran yang telah terlapisi di kalsinasi pada suhu 900°C dalam atmosfer udara selama 5 jam. Proses kalsinasi akan membentuk lapisan nanopartikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCD serta menghilangkan pelarut yang tersisa. Metode ini mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  berukuran nano pada permukaan membran

BSCF seperti yang disajikan pada Gambar 4.11 (b). Hasil uji fluks oksigen menunjukkan adanya kenaikan pada membran termodifikasi terutama pada suhu rendah. Pada suhu 600°C fluks oksigen membran termodifikasi mengalami kenaikan hingga 6 kali lipat, namun pada suhu 850°C hanya mengalami kenaikan sebesar 1,3 kali saja. Meskipun demikian penambahan lapisan nanopartikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran dapat memperluas luas permukaan area reaksi pertukaran oksigen sehingga fluks oksigen yang dihasilkan lebih luas.

Kedua penelitian mengenai pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  membuktikan penambahan lapisan pendukung  $\text{Co}_3\text{O}_4$  mampu memperluas luas permukaan membran tempat terjadinya reaksi pertukaran oksigen serta mempercepat reaksi yang terjadi sehingga dapat dibuktikan bahwa penambahan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  secara signifikan mampu meningkatkan fluks oksigen membran yang dihasilkan.

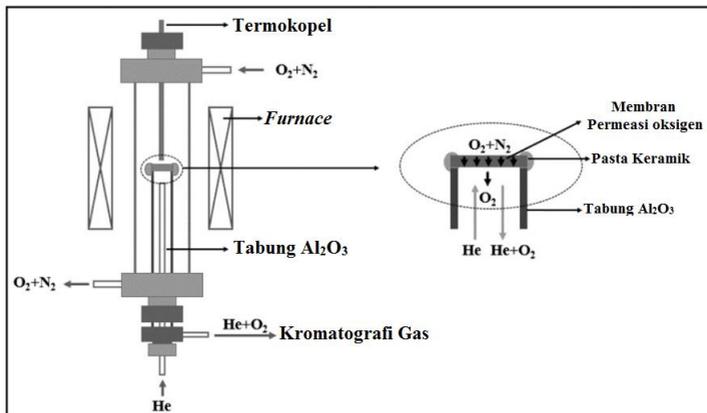
Metode pelapisan membran MIEC lainnya dilaporkan oleh Harmelia (2018) dengan bahan perekat amilum. Metode yang dilakukan hampir sama dengan metode *Dip-coating* hanya saja prekursor yang digunakan berupa campuran nikel oksida dan serium oksida yang dilarutkan dalam pasta amilum sehingga membentuk suspensi  $\text{NiO-CeO}_2/\text{amilum}$  yang kemudian dilapiskan pada permukaan membran oksida perovskit. Metode ini mampu melapiskan  $\text{NiO-CeO}_2$  dengan metode yang lebih sederhana.

### 2.2.3 Fluks Oksigen Membran MIEC

Salah satu parameter penting dalam teknologi pemisahan adalah kuantitas dan kualitas produk yang dihasilkan. Dalam teknologi pemisahan oksigen dengan membran, kualitas produk yang dihasilkan ditunjukkan dengan besarnya selektivitas membran, sementara kuantitas produk ditunjukkan dengan nilai fluks oksigen yang dihasilkan (Yacou dkk., 2011). Fluks oksigen menunjukkan banyaknya oksigen yang terpermeasi didalam membran tiap satuan waktu dan luas.

Fluks oksigen pada membran MIEC dapat diuji dengan reaktor pengujian pada suhu tinggi, sementara itu hasil gas uji

dapat dianalisis dengan kromatografi gas (*Gas Chromatography/GC*). Besar nilai fluks oksigen dapat dilihat dari jumlah fraksi oksigen yang terbaca didalam GC (Chen dkk., 2015). Salah satu reaktor pengujian fluks oksigen ditampilkan pada Gambar 2.12. Reaktor tersebut diletakan didalam *furnace* untuk meningkatkan suhu dalam reaktor. Gas yang dihasilkan dianalisis dengan GC yang tersambung pada reaktor. GC dilengkapi dengan kolom *Molecule Sieve* tipe 5A yang dapat membaca fraksi oksigen dan nitrogen yang berhasil terpermeasi didalam membran.



Gambar 2. 12 Reaktor pengujian fluks oksigen membran datar (Li dkk., 2015)

Pengujian membran datar dilakukan dengan penempelan membran pada tabung alumina dengan pasta keramik. Penempelan dikuatkan dengan pasta keramik untuk mengurangi kebocoran yang terjadi pada membran. Aliran gas umpan berupa campuran gas oksigen dan gas nitrogen dialirkan pada permukaan atas membran untuk menciptakan kondisi tekanan parsial oksigen yang tinggi. Gas helium dialirkan pada permukaan bawah membran untuk menyapu oksigen yang dihasilkan selama proses permeasi oksigen berlangsung dan membawa oksigen tersebut untuk dianalisis di GC. Pengukuran kebocoran membran dilakukan dengan mengalirkan gas nitrogen murni pada membran

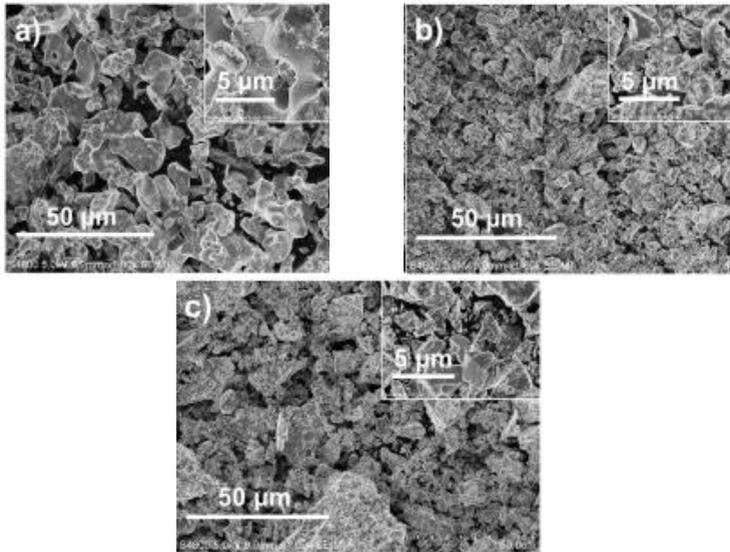
kemudian dianalisis dengan GC, kemunculan  $N_2$  menunjukkan adanya kebocoran didalam membran.

## 2.3 Sintesis Oksida Perovskit dan Membran Datar

### 2.3.1 Sintesis $Ba_xSr_{1-x}Co_yFe_{1-y}O_{3-\delta}$ (BSCF) dengan Metode *Solid State Reaction*

Banyak metode yang dapat digunakan untuk mensintesis oksida perovskit. Beberapa diantaranya adalah metode pengkompleksan EDTA–sitrat atau yang disebut dengan metode Pechini (Klande dkk., 2013, Ovenstone dkk., 2008), metode ko-presipitasi (Darab, 2008), dan metode *solid state reaction* (Waindich dan Muller., 2009).

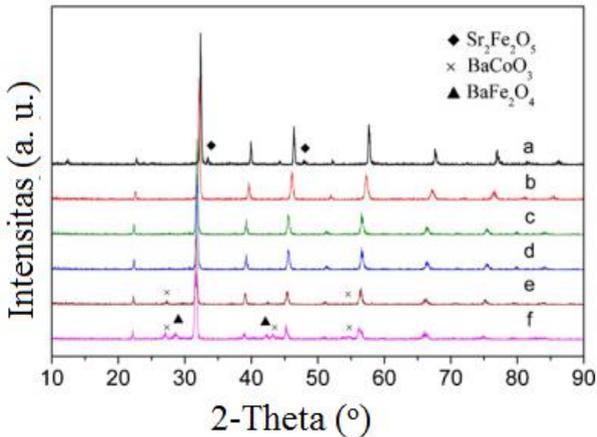
Penggunaan metode sintesis dan suhu kalsinasi yang berbeda selama proses sintesis oksida perovskit dapat mempengaruhi kristanilitas, morfologi, dan luas area permukaan membran yang dihasilkan. Pengaruh perbedaan metode sintesis BSCF terhadap performa permeasi oksigen telah dilaporkan oleh Xu dkk., (2016). Oksida perovskit BSCF disintesis dengan tiga metode yang berbeda yaitu metode *sol combustion* (BSCF-SC), metode *sol gel* (BSCF-SG) dan metode *solid state* (BSCF-SS). Ketiga metode dapat menghasilkan oksida perovskit yang murni tanpa adanya pengotor ditandai dengan hasil difraktogram melalui analisis XRD dimana tidak ada puncak pengotor pada ketiga difraktogram. Namun ketiga metode menghasilkan oksida perovskit BSCF dengan ukuran partikel yang berbeda-beda seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 2.13. BSCF-SS memiliki ukuran partikel paling besar diantara kedua BSCF lainnya. Dimana hal ini perlu dihindari untuk mendapatkan membran BSCF yang rapat. Meskipun demikian, BSCF-SS memiliki aktivitas katalitik permeasi oksigen yang jauh lebih besar dibandingkan dengan BSCF-SG dan BSCF-SS sehingga metode *solid state* menjadi salah satu metode yang dianjurkan untuk digunakan dalam sintesis oksida perovskit BSCF dengan metode yang sederhana dan skala yang besar.



Gambar 2. 13 Foto SEM (a) partikel BSCF-SC, (b) BSCF-SG, dan (c) BSCF-SS (Xu dkk., 2016)

Metode *solid state* didasarkan pada proses difusi ion-ion pereaktan yang terjadi pada lapisan antar muka pereaktan sehingga terbentuk susunan kristal baru (Athayde dkk., 2009). Proses pengadukan reaktan menjadi salah satu hal penting untuk dilakukan. Metode *solid state* memerlukan reaktan dengan kemurnian yang tinggi untuk mendapatkan produk dengan kristaninitas yang tinggi pula. Dalam penelitiannya, Zhao dkk., (2008) dengan pereaksi berupa  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CoCO}_3$  and  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Sintesis oksida perovskit dilakukan dengan mencampurkan reaktan yang telah tertimbang dengan *ball mill* selama 4 jam dalam pelarut etanol. Campuran reaktan kemudian dikalsinasi pada suhu  $1000^\circ\text{C}$  selama 6 jam agar ion reaktan berdifusi satu sama lain sehingga membentuk kristal oksida perovskit BSCF baru. Oksida perovskit yang dihasilkan dianalisis dengan XRD dengan sumber sinar radiasi  $\text{Cu K}\alpha$  untuk menentukan fasa

kristalsenyawa. Hasil difraktogram sintesis  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{x-1}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-6}$  ( $0,2 \leq x \leq 0,7$ ) disajikan pada Gambar 2.14.



Gambar 2. 14 Pola XRD  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{x-1}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-6}$  (a)  $x = 0,2$ ; (b)  $x = 0,3$ ; (c)  $x = 0,4$ ; (d)  $x = 0,5$ ; (e)  $x = 0,6$ ; dan (f)  $x = 0,7$  (Zhao dkk., 2008)

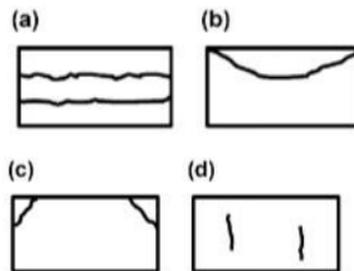
### 2.3.2 Pembuatan Membran Datar BSCF

Membran datar berbentuk piringan (*Disc Membran*) merupakan salah satu jenis membran yang paling banyak digunakan dalam penelitian membran pemisah oksigen karena memiliki tingkat keretakan yang rendah sehingga mudah untuk diaplikasikan dalam pengujian permeasi oksigen.

Metode *dry pressing* menjadi salah satu metode yang paling banyak digunakan untuk menyiapkan membran datar. Teknik pembentukan yang sederhana menjadikan metode ini banyak digunakan untuk mempersiapkan sampel keramik dalam skala laboratorium maupun skala besar dalam industri. Metode *dry pressing* dilakukan dengan memadatkan serbuk kering yang diberi tekanan tinggi pada cetakan. Tekanan yang digunakan dalam metode *dry pressing* menjadi salah satu tekanan tertinggi

dibandingkan metode lain yang digunakan dalam pembuatan membran hingga mencapai 1000 MPa.

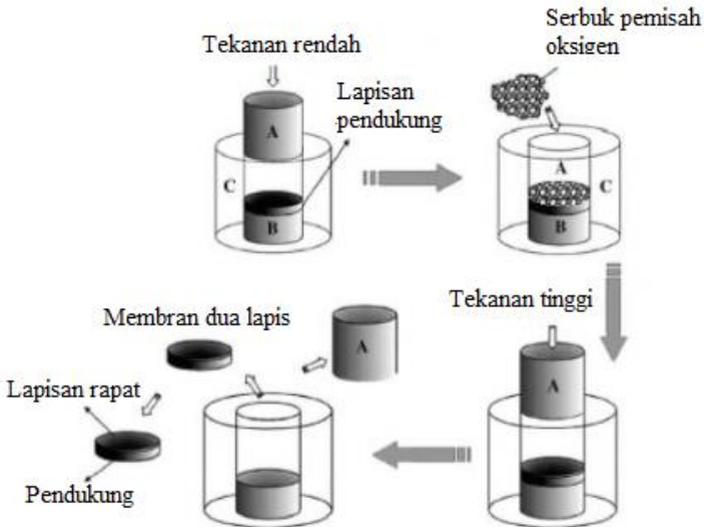
Terdapat 2 teknik yang digunakan dalam metode *dry pressing* yaitu *isotactic compaction* dan *uniaxial compaction*. *Isotactic compaction* dilakukan dengan memberikan tekanan secara homogen pada seluruh sisi membran sementara pada *uniaxial compaction* tekanan hanya diberikan pada sisi axial saja. Teknik *uniaxial compaction* menjadi salah satu teknik yang paling banyak digunakan untuk produksi skala besar dalam industri. Namun tekanan yang diberikan tidak homogen dikarenakan beberapa tekanan hilang akibat adanya retakan dalam yang terjadi antar partikel dan retakan luar yang terjadi antara partikel dengan cetakan. Beberapa kecacatan yang dapat terbantu akibat penggunaan teknik *uniaxial compaction* ditunjukkan pada Gambar 2.15 (Zhu dan Yang, 2016).



Gambar 2. 15 Beberapa jenis kecacatan pada membran yang disiapkan melalui metode *uniaxial compaction* (Zhu dan Yang, 2016)

Selain dapat digunakan untuk menyiapkan membran rapat, metode *dry pressing* juga dapat digunakan untuk menyiapkan membran asimetris. Skema pembuatan dua lapisan membran (lapisan rapat tipis untuk pemisahan oksigen dan lapisan pendukung) ditampilkan pada Gambar 2.16. Pertama, serbuk pendukung dimasukkan kedalam cetakan untuk kemudian ditekan

dengan *hydraulic press* dengan tekanan yang rendah. Setelah penahanan beberapa saat, tekanan kemudian dihentikan dan ditambahkan serbuk lapisan rapat pemisah oksigen. Tekanan kemudian diberikan kembali dengan kekuatan lebih besar dengan waktu penahanan lebih lama sehingga terbentuklah membran keramik dua lapis. Membran yang telah dikeluarkan dari cetakan kemudian disinter dengan kondisi dan pengaturan suhu tertentu untuk mendapatkan membran asimetris yang rapat (Basile dan Galluci, 2010).



Gambar 2. 16 Skema pembuatan membran dua lapis melalui metode *dry pressing* (Chen dkk., 2007).

## 2.4 $\text{Co}_3\text{O}_4$ Sebagai Katalis Membran MIEC

Secara umum, oksida logam transisi memiliki kinerja katalis reaksi perubahan oksigen (*Oxygen Evolution Reaction/OER*) yang baik. Dimana OER menjadi salah satu perhatian peneliti karena memiliki manfaat penting dalam banyak bidang seperti

elektrolisis, konversi energi, dan teknologi penyimpanan.  $\text{Co}_3\text{O}_4$  berbentuk spinel menjadi salah satu oksida logam transisi yang memiliki efisiensi dan aktivitas katalitik yang tertinggi. Meskipun demikian, spinel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  sulit disiapkan dalam fasa yang murni (Sadiek dkk., 2012).

Bilangan oksidasi logam transisi dapat mempengaruhi kinerja katalitik OER.  $\text{Co}^{3+}$  diketahui merupakan sisi aktif bagi reaksi perubahan oksigen (OER). Sementara itu  $\text{Co}^{2+}$  memiliki peranan penting sebagai katalis reaksi reduksi oksigen (*Oxygen Reduction Reaction/*ORR). Peningkatan kekosongan oksigen mampu meningkatkan reaktivitas sisi aktif material sehingga kinerja OER menjadi lebih baik (Xu dkk., 2018). Kekosongan oksigen menyebabkan elektron disekitarnya mengalami delokalisasi kesekitar atom  $\text{Co}^{3+}$ . Delokalisasi elektron menyebabkan elektron mudah tereksitasi sehingga menyebabkan peningkatan konduktivitas dan elektrokatalisis katalis (Zhuang dkk., 2017).

Reaksi OER dan ORR merupakan reaksi yang terjadi pada permukaan membran MIEC selama proses permeasi oksigen terjadi. Peningkatan laju reaksi permukaan oksigen dapat meningkatkan nilai fluks oksigen yang dihasilkan karena reaksi permukaan merupakan salah satu faktor pembatas nilai fluks oksigen. Penambahan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  sebagai katalis OER pada membran MIEC telah dilaporkan sebelumnya oleh Li dkk.(2015) dan Wang dkk.(2017). Dimana hasilnya menunjukkan penambahan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dapat meningkatkan nilai fluks oksigen membran datar BSCF secara signifikan.

## **2.5 Karakterisasi Oksida Perovskit dan Membran MIEC**

### **2.5.1 Difraksi Sinar X (*X-Ray Diffraction* /XRD)**

Difraksi sinar X atau XRD merupakan salah satu alat karakterisasi utama dalam bidang kimia zat padat dan material. XRD digunakan untuk analisis pola difraksi dari suatu material serta menentukan bentuk kristalnya. Setiap kristal memiliki pola difraksi yang unik sehingga dapat digunakan sebagai kode khusus untuk mengidentifikasi kristal tersebut (Kong dkk., 2008)

Sinar X terbentuk dari radiasi elektromagnetik yang muncul pada panjang gelombang 0,01-10,0 nm. Sinar X muncul ketika suatu atom ditembakkan elektron dengan kecepatan tinggi. Dalam analisis XRD, sinar X yang dihasilkan disinarkan kematerial yang diuji. Pantulan sinar X akan terjadi ketika sinar X tersebut menabrak atom dalam kisi kristal material. Sinar X yang dipantulkan kemudian dibaca oleh detektor untuk mengkonversi sinar tersebut menjadi informasi lain yang dapat dibaca. Prinsip difraksi sinar X didasarkan pada hukum Bragg berikut ini :

$$n\lambda = 2d \cdot \sin \theta \quad (2.3)$$

Dari hukum Bragg tersebut dapat diketahui nilai  $d$  (jarak antar atom) dan  $\theta$  (sudut difraksi), dimana untuk satu panjang gelombang hanya memiliki 1 sudut difraksi.

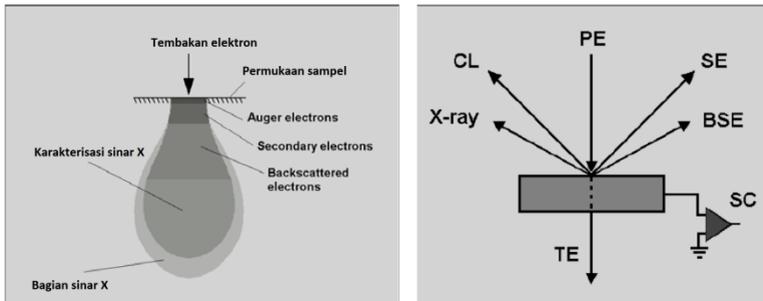
Pada penelitian Zhao dkk. (2008), perbedaan komposisi kation A dalam oksida perovskit sintesis  $Ba_xSr_{x-1}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$  ( $0,2 \leq x \leq 0,7$ ) menyebabkan perbedaan pola difraksi yang dihasilkan seperti yang disajikan pada Gambar 2.14. Terjadi pergeseran nilai sudut difraksi ( $\theta$ ) kearah lebih kecil seiring bertambahnya jumlah kation  $Ba^{2+}$  yang ditambahkan.

### **2.5.2 Scanning Electron Microscopy and Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (SEM-EDX)**

*Scanning Electron Microscopy* (SEM) adalah salah satu teknik karakterisasi yang bisa digunakan untuk mendapatkan informasi struktur suatu sampel dengan rentang magnifikasi yang cukup luas. SEM dapat melengkapi mikroskop optik untuk mempelajari tentang tekstur, topografi, dan permukaan dari suatu sampel. Hasil gambar yang dihasilkan oleh SEM telah memiliki kualitas tiga dimensi (West, 1984).

Prinsip kerja SEM adalah membaca elektron yang tereksitasi akibat tabrakan antara sumber elektron alat dengan sampel. Elektron yang dihamburkan kemudian ditangkap oleh detektor dan dipetakan sehingga menghasilkan gambar 2 dimensi. Untuk mendapatkan gambaran bidang lateral sampel yang jelas maka

*secondary electron* (SE) sampel harus terdeteksi. Interaksi antara elektron yang ditembakkan dengan sampel disajikan pada Gambar 2.17 (Darab, 2008).

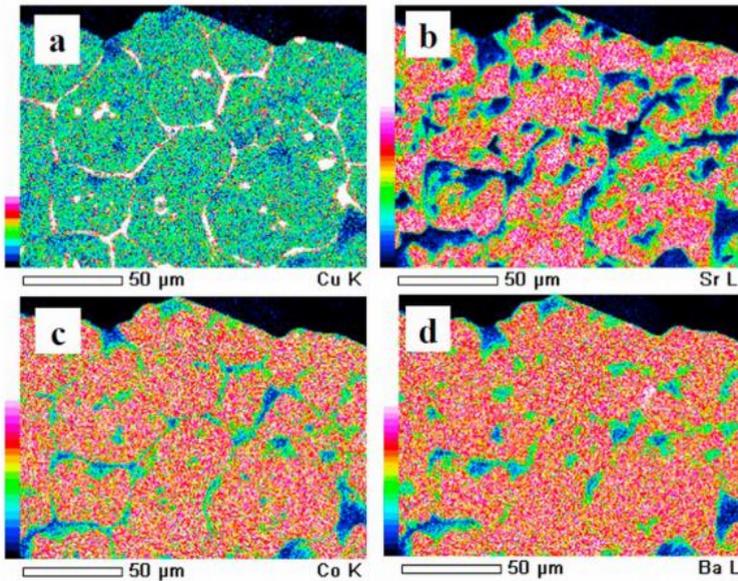


Gambar 2. 17 Interaksi antara sinar elektron dengan sampel (Darab, 2008)

Dalam penggunaannya SEM dilengkapi dengan *Dispersive X-Ray Spectroscopy* atau EDX. EDX bekerja dengan mendeteksi karakteristik sinar X yang dihasilkan tiap elemen dalam sampel akibat penyinaran elektron berkekuatan tinggi oleh SEM. Pemetaan hasil sinar X dapat memberikan informasi mengenai sebaran elemen dalam sampel. Selain itu, jumlah emisi sinar X yang dihasilkan dapat memberikan informasi mengenai konsentrasi tiap elemen dalam sampel (Heath, 2015).

Analisis SEM-EDX digunakan oleh Leo dkk.(2017) untuk pemetaan sebaran unsur Ba, Sr, Co, dan Cu pada permukaan membran *hollow fiber*  $Ba_{0,5}Sr_{0,5}Co_{1-x}Cu_x$ (BSCC). Hasil pemetaan unsur Ba, Sr, Co, dan Cu ditampilkan pada Gambar 2.18 dimana terdapat sebaran batas butiran oksida tembaga (Cu) yang sangat tinggi pada beberapa bagian membran. Warna putih dalam pemetaan EDX menunjukkan intensitas tertinggi yang diikuti dengan warna ungu dan merah serta biru tua dan hitam untuk konsentrasi kecil. Berkebalikan dengan temuan tersebut, unsur Ba, Sr, dan Co terlihat tersebar merata pada permukaan membran yang menunjukkan bahwa ketiga unsur telah menyatu membentuk

oksida perovskit. Hasil pemetaan unsur menunjukkan bahwa Cu tidak menyatu pada sisi kation B sehingga memisah dan membentuk batas butiran oksida tembaga dengan konsentrasi tinggi pada permukaan membran BSCC kaya tembaga.



Gambar 2. 18 Sebaran unsur (a) tembaga, (b) stronsium, (c) kobalt, dan (d) barium (Leo dkk., 2017).

## BAB III METODOLOGI PENELITIAN

### 3.1. Alat dan Bahan

#### 3.1.1 Alat

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah mortar dan alu porselen, kaca arloji, spatula besi, neraca analitik, krusibel, *furnace*, *oven*, *hydraulic press*, *hot plate*, desikator, ayakan ukuran 400 mesh, cetakan membran berbahan baja tahan karat dengan diameter 13 mm.

Peralatan karakterisasi yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari Difraktogram Sinar-X (PANalytical Expert System) dan *Scanning Electron Microscope* (SEM)(ZEISS EVO MA 10) yang dilengkapi dengan *Energy Dispersive X-ray*(EDX) (Bruker). Sementara itu, uji fluks oksigen dilakukan dengan reaktor uji fluks oksigen yang terhubung dengan kromatografi gas (GC *Buck Scientific Model 910*) dengan kolom *molecular sieve 13x* dan *hayesep D* serta dengan detektor tipe TCD. Aliran gas diatur dengan *Mass Flow Controller* (MFC).

#### 3.1.2 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah barium karbonat ( $\text{BaCO}_3$ ) p.a 99,5% (Merck), stronsium karbonat ( $\text{SrCO}_3$ ) p.a 99,9% (Merck), oksida kobalt ( $\text{Co}_3\text{O}_4$ ) p.a 99,5% (Merck), oksida besi ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) p.a 97% (Merck), amilum teknis (brataco chemical), etanol, lilin, gas helium (He), *compressed air*, pasta perak (MJ Chemical) dan lem keramik(Cerama Bond 569 Aremco Products, INC).

### 3.2 Metode Penelitian

#### 3.2.1 Sintesis Oksida Perovskit $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$

( $0,5 \leq x \leq 0,7$ )

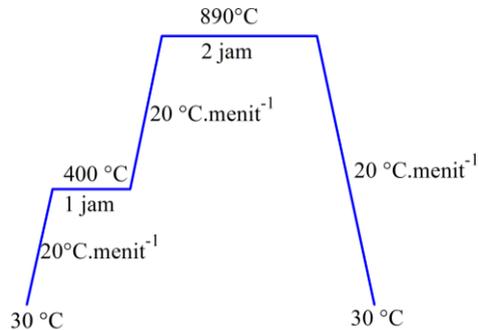
Oksida perovskit  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ) atau BSCF xx82 disintesis melalui metode *solid state*. Sebelum digunakan seluruh reaktan dipanaskan pada suhu  $105^\circ\text{C}$  selama 1

jam dalam oven. Setelah itu, reaktan didiamkan hingga dingin dalam desikator selama 1 hari. Reaktan berupa oksida dan karbonat yang telah dipreparasi kemudian ditimbang sesuai dengan massa stoikhiometrinya dengan neraca analitis. Massa stoikhiometri reaktan untuk tiap-tiap oksida perovskit ditampilkan pada Tabel 3.1.

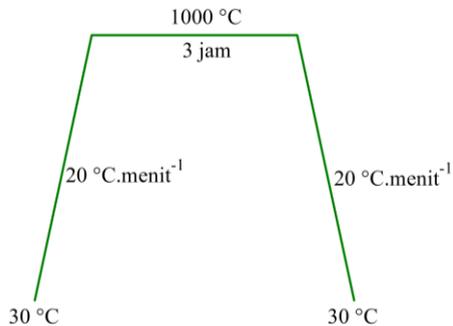
Tabel 3. 1 Massa stoikhiometri reaktan untuk sintesis 30 gram oksida perovskit  $Ba_xSr_{1-x}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ )

Oksida Perovskit BSCF	Reaktan			
	BaCO <sub>3</sub> (g)	SrCO <sub>3</sub> (g)	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (g)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (g)
5582	13,530	10,121	8,805	2,170
6482	15,875	7,917	8,609	2,141
7382	18,118	5,809	8,422	2,094

Sintesis oksida perovskit BSCF xx82 dilakukan dengan mencampur dan menggerus reaktan yang telah ditimbang sesuai dengan massa stoikhiometrinya dengan mortar dan alu porselen selama 2 jam hingga homogen. Campuran yang telah homogen kemudian dimasukan kedalam krusibel untuk dikalsinasi dengan *furnace*. Kalsinasi campuran reaktan dilakukan pada suhu 890 dan 1000°C dengan tahapan yang berbeda. Kalsinasi pertama dilakukan pada suhu 890°C selama 2 jam dengan penahanan pada suhu 400°C selama 1 jam. Proses ini dilakukan sebanyak dua kali. Hasil yang diperoleh dari kalsinasi pada suhu 890°C ini kemudian digerus kembali untuk proses kalsinasi pada suhu yang sama (890°C). Kalsinasi kedua dilakukan pada suhu 1000°C selama 3 jam. Kalsinasi pada suhu 1000°C juga dilakukan sebanyak dua kali. Kenaikan suhu yang digunakan selama proses kalsinasi adalah 20°C.menit<sup>-1</sup>. Program suhu kalsinasi sintesis oksida perovskit BSCF xx82 pada suhu 890 dan 1000°C disajikan pada Gambar 3.1 (a) dan (b).



(a)



(b)

Gambar 3. 1 Tahapan kalsinasi BSCF pada suhu (a) 890 dan (b) 1000°C

Serbuk yang diperoleh dari hasil kalsinasi selanjutnya dikarakterisasi dengan *X-Ray Diffraction (XRD)*. Karakterisasi dengan XRD dilakukan di Departemen Teknik Material dan Metalurgi FTI-ITS. Karakterisasi dilakukan pada sudut penyinaran  $2\theta$  antara sudut  $20^\circ$  hingga sudut  $90^\circ$  dengan sumber sinar  $\text{CuK}\alpha$  ( $\lambda = 1,54060\text{\AA}$ ). Difraktogram yang dihasilkan kemudian dicocokkan dengan difraktogram standar untuk  $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  dalam kartu *Powder Diffraction File (PDF Card)* bernomor 01-075-6980.

### 3.2.2 Pembuatan Membran Datar Oksida Perovskit



Membran datar oksida perovskit BSCF xx82 disiapkan melalui metode *dry pressing* dengan diameter awal 13 mm dan ketebalan awal 2 mm. Membran datar oksida perovskit BSCF xx82 disiapkan dengan serbuk yang telah lolos ayakan 400 mesh. Sebanyak 0,93 gram serbuk oksida perovskit dimasukan kedalam cetakan membran. Serbuk selanjutnya ditekan dengan tekanan sebesar 2 ton dengan waktu penahanan 1 menit dilanjutkan 4 ton dengan waktu penahanan 15 menit. Proses ini akan menghasilkan membran mentah BSCF xx82. Membran mentah merupakan membran yang telah berhasil dibentuk ketika proses pembuatan membran namun belum mengalami sintering. Membran mentah yang dihasilkan selanjutnya disiapkan untuk pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,5 \leq x \leq 0,7$ ).

### 3.2.3 Pembuatan Membran Datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 dengan Bahan Perekat Amilum Melalui Metode *Pre-sintering* dan *Post-sintering*

Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 disiapkan dengan pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF 5582. Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang dihasilkan diharapkan memiliki hasil sesuai dengan Gambar 3.2.  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dilapiskan dengan bahan perekat amilum dan disiapkan melalui dua metode berbeda yaitu metode *pre-sintering* dan metode *post-sintering*. Perbedaan kedua metode ini terdapat pada tahap pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Pada metode *pre-sintering*, pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dilakukan sebelum membran BSCF 5582 membentuk membran rapat (masih dalam bentuk membran berpori), sementara pada metode *post-sintering*, pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dilakukan pada membran rapat 5582.



Gambar 3. 2Skema Membran Datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582

### 3.2.3.1 Metode *Pre-sintering*

Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}5582$  dengan metode *pre-sintering* diawali dengan proses sintering membran mentah BSCF 5582 pada suhu  $900^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Sintering pada suhu ini akan menghasilkan membran perovskit yang masih berpori (Syafii, 2016). Keberadaan pori ini diuji dengan uji tetes air, dimana dilakukan penetesan air pada permukaan membran hasil sintering suhu  $900^\circ\text{C}$ .

Pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran berpori BSCF dilakukan dengan pelapisan suspensi pelapis pada permukaan membran datar BSCF 5582. Suspensi pelapis terdiri dari campuran oksida kobalt ( $\text{Co}_3\text{O}_4$ ) dan bahan perekat berupa amilum. Suspensi pelapis disiapkan dengan mencampurkan oksida kobalt dalam bubur amilum. Amilum sebanyak 0,5 gram dimasukkan ke dalam 2 mL aqua DM dan diaduk hingga merata. Setelah itu 3 mL aqua DM yang telah mendidih ditambahkan dan diaduk kembali. Sisa amilum yang menempel kemudian dicuci dengan 1 mL aqua DM. Proses ini menghasilkan bubur amilum. Selanjutnya, sebanyak 0,3 gram oksida kobalt ditambahkan pada bubur amilum. Campuran tersebut dipanaskan di atas *hot plate* disertai dengan pengadukan hingga membentuk suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum yang berbentuk pasta. Suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum kemudian dioleskan pada permukaan atas membran datar BSCF 5582. Membran yang telah terlapis kemudian dидiamkan hingga mengering. Membran terlapis yang telah kering selanjutnya disintering pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Seluruh tahapan sintering pada metode *pre-sintering* dilakukan dengan laju  $3^\circ\text{C}.\text{menit}^{-1}$ . Membran yang dihasilkan kemudian diamati morfologi permukaan dan penampang lintangnya dengan *Scanning Electron Microscopy (SEM)-Energy Dispersive X-Ray (EDX)*.

### 3.2.3.2. Metode *Post-sintering*

Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF} 5582$  dengan metode *post-sintering* diawali dengan proses sintering membran mentah BSCF 5582 pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 4 jam untuk mendapatkan membran rapat BSCF 5582. Kerapatan membran diuji dengan uji tetes air. Membran kemudian diukur dimensi sebelum dan sesudah sintering untuk mengetahui nilai susut bakar

membran. Nilai susut bakar membran diukur dengan Persamaan 3.1.

$$\text{Susut Bakar (\%)} = \frac{V_{\text{Awal}} - V_{\text{Akhir}}}{V_{\text{Awal}}} \times 100 \% \quad 3.1$$

dimana  $V_{\text{awal}}$  adalah volume membran mentah sebelum sintering dan  $V_{\text{akhir}}$  adalah volume membran rapat setelah sintering. Tebal dan diameter membran sebelum dan sesudah sintering diukur dengan jangka sorong.

Membran rapat BSCF 5582 kemudian dilapisi dengan material suspensi pelapis. Suspensi pelapis disiapkan dengan langkah yang samaseperti metode *pre-sintering*. Setelah membran terlapis kering, membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dikalsinasi pada suhu  $800^\circ\text{C}$  selama 3 jam. Tahapan sintering dan kalsinasi dilakukan dengan laju kenaikan dan penurunan suhu sebesar  $3^\circ\text{C}.\text{menit}^{-1}$ . Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang dihasilkan diamati dengan SEM-EDX. Hasilnya dibandingkan dengan metode *pre-sintering* untuk melihat metode yang efektif dalam pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582. Metode yang dinilai efektif digunakan untuk menyiapkan membran komposit dengan komposisi lain (BSCF 6482 dan BSCF 7382).

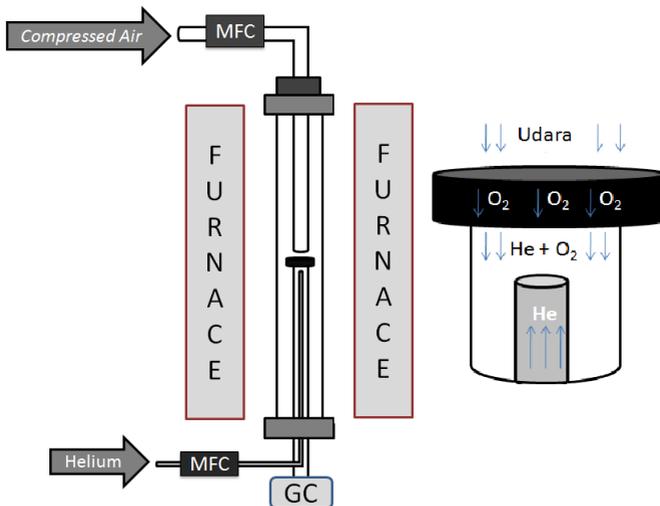
#### **3.2.4 Pembuatan Membran Datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 dan $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382 dengan Metode *Post-sintering***

Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 dengan metode *post-sintering* dilakukan dengan cara yang sama seperti pada BSCF 5582. Membran mentah BSCF 6482 dan BSCF 7382 disintering pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Uji tetes air dilakukan pada membran hasil sintering untuk mengetahui kerapatan membran. Perubahan dimensi membran diukur untuk mengetahui besar nilai susut bakar membran sesuai dengan Persamaan 3.1. Membran yang telah rapat kemudian dilapisi dengan material pelapis  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum. Membran datar yang telah dilapisi kemudian dikalsinasi pada suhu  $800^\circ\text{C}$  selama 3 jam. Seluruh tahapan sintering dan

kalsinasi dilakukan dengan laju kenaikan suhu  $3^{\circ}\text{C}.\text{menit}^{-1}$ . Membran datar yang dihasilkan kemudian diamati dengan SEM-EDX.

### 3.2.5 Uji Fluks Oksigen

Uji fluks oksigen dilakukan dalam rangkaian reaktor uji seperti yang disajikan pada Gambar 3.3. Rangkaian reaktor disambungkan langsung dengan GC sehingga pengukuran gas hasil reaksi dilakukan secara online. Sebelum pengukuran fluks oksigen, dilakukan analisis konsentrasi oksigen dan nitrogen dalam udara untuk mengetahui perbandingan konsentrasi oksigen dan nitrogen dalam udara.



Gambar 3. 3 Skema reaktor uji fluks oksigen

Uji fluks oksigen dilakukan pada membran datar BSCF 5582 hasil sintering pada suhu  $1150^{\circ}\text{C}$  dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan dengan metode *post-sintering*. Membran yang diuji ditempelkan pada pipa kuarsa dengan lem pasta perak dan diperkuat dengan lem keramik. Rangkaian ini kemudian diletakkan didalam furnace. Sisi atas membran dialirkan

gas umpan berupa udara/*compressed air* dengan laju alir 150 mL.menit<sup>-1</sup>. Sisi bawah membran dialiri gas helium sebagai gas penyapu dengan beberapa laju alir. Laju alir gas umpan dan gas penyapu masing-masing diatur dengan MFC (*Mass Flow Controller*). Uji fluks oksigen dilakukan pada beberapa suhu reaksi yaitu 600, 700, dan 800°C dengan laju kenaikan suhu sebesar 5°C.menit<sup>-1</sup>. Pada suhu reaksi 800°C dilakukan pengujian nilai fluks oksigen pada variasi laju alir helium sebesar 20, 30, dan 40 mL.menit<sup>-1</sup>.

Selanjutnya gas hasil reaksi dianalisis secara online dengan kromatografi gas (*Gas Chromatography/GC*) yang dilengkapi kolom molecule sieve 13X dan Hayesep D serta detektor TCD. Nilai fluks oksigen dihitung dengan persamaan 3.2.

$$JO_2 = \frac{F \times CO_2}{A} \quad 3.2$$

dimana  $JO_2$  adalah nilai fluks oksigen (mol.detik<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>), F adalah laju alir helium (mL.menit<sup>-1</sup>),  $CO_2$  adalah konsentrasi oksigen (%), dan A adalah luas area efektif membran (cm<sup>2</sup>) (Utomo, 2014).

## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1 Sintesis Oksida Perovskit BSCF 5582, 6482, dan 7382

Oksida perovskit BSCF 5582, 6482, dan 7382, disintesis dengan metode *solid state* seperti yang dilakukan oleh Utomo (2014). Metode *solid state* dipilih karena memiliki beberapa kelebihan diantaranya, menghasilkan produk dengan *yield* yang besar dan kristanilitas yang tinggi (Utomo, 2014). Sintesis material melalui metode *solid state* dilakukan dengan reaktan karbonat, oksida, maupun garam dengan tingkat kemurnian dan stabilitas yang tinggi untuk menghindari terbentuknya fasa-fasa yang tidak diinginkan. Oleh sebab itu, pada penelitian ini digunakan pereaksi berupa oksida logam dan logam karbonat dengan kemurnian yang tinggi. Perbandingan massa reaktan menjadi salah satu hal yang penting dalam metode *solid state*, sisa material yang tidak bereaksi akan sulit dipisahkan dari produk utama sehingga dapat menurunkan kemurnian produk yang dihasilkan. Seluruh reaktan dipanaskan terlebih dahulu dalam oven dengan suhu 105°C selama kurang lebih 1 jam. Pemanasan bertujuan untuk menghilangkan air yang terserap dalam reaktan sehingga mengurangi faktor kesalahan selama penimbangan. Massa reaktan yang dibutuhkan selanjutnya ditimbang dengan neraca analitis sesuai dengan Tabel 3.1.

Reaktan yang telah ditimbang kemudian digerus selama 2 jam dengan mortar dan alu porselen. Penggerusan bertujuan untuk mendapatkan campuran yang homogen. Campuran reaktan yang telah homogen ditandai dengan terbentuknya campuran berwarna merah keunguan. Warna campuran dipengaruhi oleh warna reaktan yang digunakan. Warna reaktan disajikan pada Tabel 4.1. Campuran reaktan kemudian disebut sebagai serbuk prekursor.

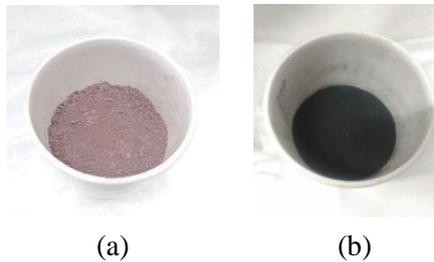
Tabel 4. 1. Warna reaktan sintesis oksida perovskit BSCF xx82

Reaktan	BaCO <sub>3</sub>	SrCO <sub>3</sub>	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
Warna	Putih	Putih	Hitam	Merah Bata

Serbuk prekursor selanjutnya dikalsinasi pada suhu 890 dan 1000°C sesuai tahapan pada Gambar 3.1. Penahanan pada kalsinasi pertama dilakukan pada suhu 400°C selama satu jam dan dilanjutkan pemanasan pada suhu 890°C selama dua jam. Menurut analisis TGA-DTA yang dilakukan oleh Maulidah (2010), pada suhu sekitar 400°C terjadi dekomposisi senyawa logam nitrat menjadi senyawa oksida logam sementara pada suhu 480°C terjadi dekomposisi logam karbonat menjadi senyawa oksida logam. Pada sintesis ini, diperkirakan terjadinya pembentukan oksida logam BaO dan SrO dari dekomposisi BaCO<sub>3</sub> dan SrCO<sub>3</sub> pada suhu tersebut. Pada suhu selanjutnya, yaitu 890°C terjadi proses pembentukan oksida perovskit melalui difusi ion-ion logamnya. Hal ini didasarkan pada laporan Maulidah (2010) yang menyatakan bahwa senyawa perovskit berbasis kobalt terbentuk pada suhu reaksi 880°C. Proses kalsinasi ini dilakukan sebanyak dua kali untuk memaksimalkan pembentukan oksida perovskit. Penggerusan ulang dilakukan pada serbuk perovskit diantara dua kalsinasi tersebut untuk meningkatkan dan membentuk area kontak baru. Penggerusan menjadi hal yang penting untuk dilakukan karena reaksi *solid state* terjadi karena adanya difusi ion dari kisi kristal satu ke kisi kristal lainnya (West, 1984), dengan meningkatkan kontak antarmuka partikel maka jarak antar satu kristal dengan kristal lainnya akan semakin pendek sehingga laju reaksi semakin cepat dan produk lebih cepat terbentuk.

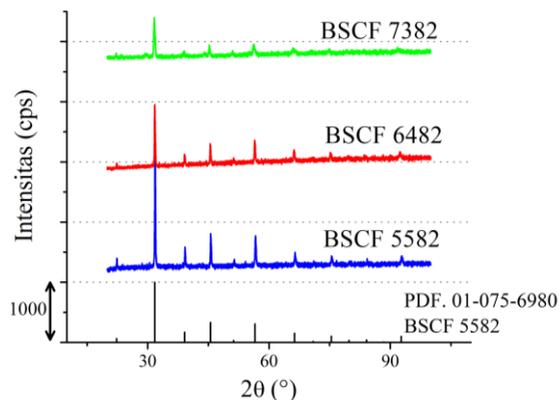
Serbuk yang diperoleh selanjutnya dikalsinasi kembali pada suhu 1000°C untuk menyempurnakan pembentukan oksida perovskit sehingga meminimalkan adanya reaktan yang mungkin belum bereaksi. Selain itu, kalsinasi tahap dua ini juga dilakukan untuk meningkatkan kristanilitas oksida perovskit.

Keberhasilan reaksi yang terjadi ditandai secara fisik dengan terjadinya perubahan warna pada reaktan. Campuran prekursor yang sebelumnya berwarna merah keunguan berubah menjadi berwarna hitam yang menandai terbentuknya oksida perovskit. Perubahan warna yang terjadi disajikan pada Gambar 4.1.



Gambar 4. 1 (a) campuran serbuk prekursor yang berwarna merah keunguan dan (b) oksida perovskit setelah tahap kalsinasi yang berwarna hitam.

Serbuk oksida perovskit yang dihasilkan kemudian dianalisis fasa kristalnya dengan Difraksi Sinar-X (*X-Ray Diffraction*/XRD). Difraktogram Sinar-X serbuk oksida perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, dan BSCF 7382 tersebut dicocokkan dengan difraktogram standar untuk BSCF 5582 berkode PDF 01-075-6980 yang dikeluarkan oleh JCPDS-International Center for Diffraction Data (*Joint Committee on Powder Diffraction Standar*). Difraktogram Sinar-X serbuk oksida perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, dan BSCF 7382 beserta standarnya ditunjukkan pada Gambar 4.2.



Gambar 4. 2 Difraktogram sinar-X serbuk hasil sintesis

Difraktogram yang dihasilkan menunjukkan adanya kesesuaian puncak antara serbuk hasil sintesis dengan difraktogram BSCF 5582 standar yang memiliki sel unit berbentuk kubus. Kesamaan pola difraktogram ini menunjukkan bahwa serbuk yang terbentuk memiliki fasa yang sama dengan BSCF 5582 dan telah membentuk oksida perovskit yang diinginkan. Hal ini sesuai dengan penelitian Shao dkk, (2001 a) yang menyatakan bahwa substitusi parsial  $Ba^{2+}$  dengan  $x < 7$  memungkinkan struktur perovskit masih terbentuk dan belum terdistorsi menjadi struktur lain.

Difraktogram sinar-X juga menunjukkan adanya pola pergeseran sudut  $2\theta$  menjadi lebih kecil seiring dengan meningkatnya kandungan ion  $Ba^{2+}$ . Salah satunya terdapat pada puncak dengan sudut antara  $31-32^\circ$  dimana puncak BSCF 5582, 6482 dan 7382 secara berturut-turut berada pada sudut  $31,82^\circ$ ;  $31,74^\circ$ ; dan  $31,62^\circ$ . Menurut persamaan Bragg, besar sudut  $2\theta$  berbanding terbalik dengan jarak antar bidang kristal ( $d$ ), sehingga pergeseran nilai  $2\theta$  menjadi lebih rendah menunjukkan adanya peningkatan jarak antar bidang dalam kristal (Syafii, 2016). Peningkatan jarak antar bidang kristal dapat menurunkan kekuatan mekanik dari membran yang dihasilkan akibat adanya peningkatan jarak antar atom penyusun kristal. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Syafii (2016) dimana peningkatan jumlah kation  $Ba^{2+}$  dapat menurunkan kualitas membran yang dihasilkan.

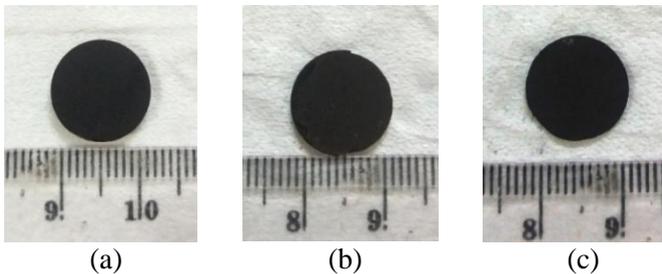
#### **4.2 Pembuatan Membran Datar Oksida Perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, BSCF 7382**

Membran datar oksida perovskit pada penelitian ini dibuat dari serbuk oksida perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, dan BSCF 7382 yang telah disintesis. Membran datar BSCF xx82 disiapkan dengan metode *dry pressing* seperti yang dilakukan oleh Fansuri dkk. (2017). Serbuk oksida perovskit yang digunakan adalah serbuk yang lolos ayakan 400 mesh. Pengayakan ini dimaksudkan untuk memilih serbuk dengan ukuran butiran yang kecil. Selain

itu, pengayakan dimaksudkan untuk menyeragamkan ukuran serbuk membran mentah.

Pembuatan membran dilakukan dengan memberikan tekanan kepada serbuk oksida perovskit yang sebelumnya telah dimasukan ke dalam cetakan membran. Membran mentah awal dibuat dengan ukuran diameter 13 mm dan tebal 2 mm. Ketebalan membran diatur dengan mengatur jumlah serbuk oksida perovskit yang dimasukan kedalam cetakan. Pemberian tekanan pada membran dilakukan secara bertahap yaitu 2 ton dengan penahanan 1 menit dilanjutkan dengan beban 4 ton dengan penahanan 15 menit. Penekanan bertingkat dimaksudkan untuk menghindari adanya *stress shock* yang menyebabkan retak hingga pecahnya membran yang dihasilkan.

Membran mentah BSCF 5582, BSCF 6482, dan BSCF 7382 yang dihasilkan memiliki diameter 12,7 mm dan ketebalan rata-rata 2,2 mm seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.3. Membran mentah yang dibuat disiapkan menjadi membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF xx82}$ .



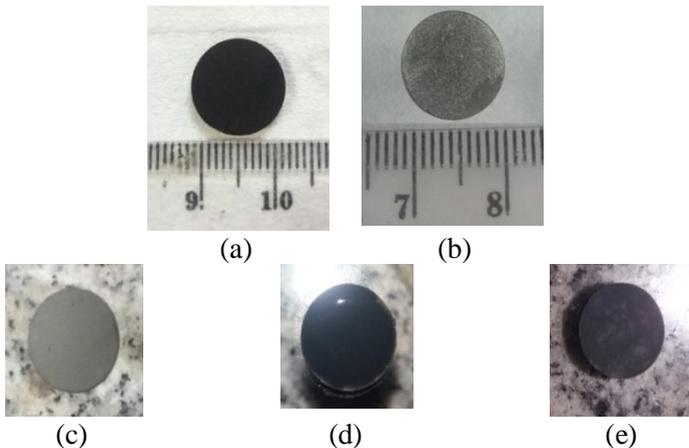
Gambar 4. 3 Membran mentah (a) BSCF 5582, (b) BSCF 6482, dan (c) 7382.

#### 4.3 Pembuatan Membran Datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF 5582}$ dengan Metode *Pre-sintering* dan *Post-sintering*

Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF 5582}$  disiapkan melalui pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582 dengan bahan perekat amilum seperti yang disiapkan oleh Harmelia (2018). Proses pelapisan membran ini dilakukan dengan metode *pre-sintering* dan *post-sintering*.

### 4.3.1 Pembuatan Membran dengan Metode *Pre-Sintering*

Metode *pre-sintering* diawali dengan melakukan sintering tahap pertama membran mentah BSCF 5582 pada suhu 900°C selama 3 jam dengan kenaikan suhu 3°C.menit<sup>-1</sup>. Membran mentah BSCF 5582 ditampilkan pada Gambar 4.4 (a). Sintering tahap pertama menghasilkan membran berwarna hitam ke abu-abuan namun belum rapat seperti yang ditampilkan pada Gambar 4.4 (c). Pengujian kerapatan pada membran BSCF 5582 setelah sintering tahap pertama dilakukan dengan uji tetes air. Uji tetes air merupakan uji fisik yang didasarkan pada sifat kapilaritas air (Or dan Tuller., 2003). Air yang dapat terserap oleh membran menunjukkan bahwa membran masih memiliki pori yang cukup besar sehingga air masih dapat terserap. Ketidakerapatan membran terlihat dari hasil uji tetes air dimana air dapat terserap kedalam membran dalam waktu yang relatif singkat.



Gambar 4. 4 Membran datar BSCF 5582 (a) mentah, (b) setelah proses sintering tahap kedua (1150 °C), (c) setelah sintering tahap pertama (900 °C), (d) setelah pelapisan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum, dan (e) setelah pendiaman membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  selama satu hari.

Membran hasil sintering kemudian dilapisi dengan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum. Pada proses pelapisan, suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum terlihat tertahan diatas membran, namun setelah didiamkan selama satu hari material pelapis terlihat terserap didalam membran. Hal ini ditandai dengan tersisnya lapisan tipis berwarna hitam diatas membran yang diduga merupakan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  seperti ditunjukkan pada Gambar 4.4 (e). Lapisan tipis yang terbentuk pada permukaan atas membran mungkin disebabkan karena terserapnya suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum kedalam pori membran akibat belum rapatnya permukaan membran BSCF 5582.

Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 5582 dilanjutkan dengan sintering tahap kedua pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Sintering ini dimaksudkan untuk merapatkan membran BSCF serta menghilangkan bahan perekat amilum. Kerapatan membran menjadi hal yang penting dalam penggunaan membran pemisah oksigen. Membran yang tidak rapat akan menyebabkan difusi ion tidak hanya terjadi lewat kekosongan oksigen yang dimiliki membran tetapi juga melalui pori-pori membran sehingga dapat menurunkan selektivitas membran pemisah oksigen (Bouwmesster, 2003). Suhu sintering membran oksida perovskit BSCF dilaporkan berada pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  dan mulai meleleh pada suhu  $1200^\circ\text{C}$  (Utomo, 2014).

Pada sintering ini, laju kenaikan dan penurunan suhu (*heating rate*) pada pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 5582 diatur sebesar  $3^\circ\text{C}.\text{menit}^{-1}$ . *Heating rate* menjadi salah satu hal yang perlu diperhatikan dalam proses sintering membran. *Heating rate* yang terlalu besar dapat memberikan *termal shock* pada membran sehingga membran yang dihasilkan dapat retak hingga pecah (Fansuri dkk., 2017). Selain itu untuk mencegah terjadinya *termal shock* laju penurunan suhu pun tidak boleh terlalu besar.

Hasil sintering tahap kedua pada membran datar BSCF 5582 terlapis suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum menghasilkan membran berwarna abu-abu. Meskipun tidak terlihat jelas adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan atas membran datar BSCF 5582, namun terlihat sedikit perbedaan warna antara permukaan bawah dan permukaan atas membran datar BSCF terlapis  $\text{Co}_3\text{O}_4$  seperti

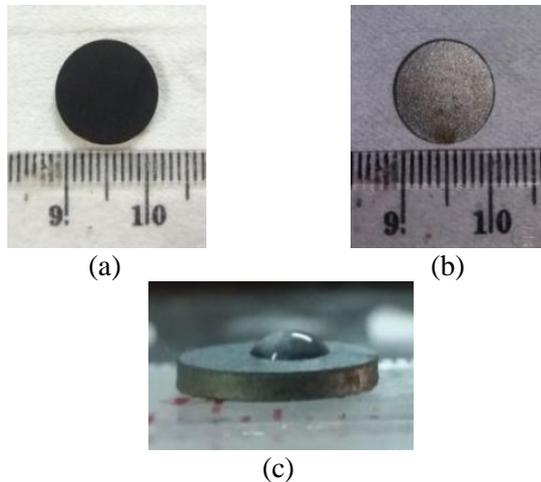
terlihat pada Gambar 4.4 (b). Bagian atas membran terlihat berwarna sedikit gelap, hal ini diperkirakan merupakan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  meskipun sangat tipis.

#### **4.3.2 Pembuatan Membran dengan Metode *Post-Sintering***

Metode *post-sintering* dilakukan dengan melapiskan material pelapis suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum pada membran BSCF 5582 yang telah rapat. Metode ini diawali dengan proses sintering membran mentah BSCF 5582 pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 4 jam dengan laju kenaikan  $3^\circ\text{C}/\text{menit}$ . Pemilihan suhu sintering tetap didasarkan pada penelitian yang dilaporkan Utomo, (2014). Proses sintering ini dimaksudkan untuk mendapatkan membran BSCF 5582 yang rapat sehingga dapat menghindari terserapnya material pelapis kedalam membran yang dapat mengakibatkan terjadinya distribusi partikel Co kedalam membran. Distribusi partikel Co dalam membran dapat menyebabkan berubahnya komposisi oksida perovskit membran sehingga dapat menurunkan kinerja membran.

Membran BSCF 5582 sebelum dan setelah sintering ditunjukkan pada Gambar 4.3 (a) dan (b). Berdasarkan Gambar 4.3 terjadi perubahan warna pada membran sebelum dan sesudah sintering. Membran BSCF 5582 sebelum sintering berwarna hitam pekat, sementara setelah sintering berwarna perak mengkilat. Proses sintering ini mampu menghasilkan membran BSCF 5582 yang rapat, ditunjukkan dengan uji tetes air dimana membran mampu menahan molekul air dengan waktu yang cukup lama seperti disajikan pada Gambar 4.3 (c).

Sintering pada membran juga menyebabkan terjadinya perubahan dimensi pada membran BSCF 5582 secara signifikan. Penurunan dimensi pada membran oksida perovskit setelah sintering menunjukkan adanya peningkatan kerapatan membran. Perubahan dimensi dan susut bakar pada membran sebelum dan sesudah sintering ditampilkan pada Tabel 4.1



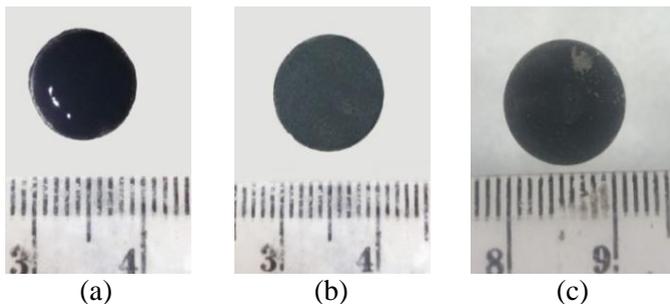
Gambar 4. 5 Membran BSCF 5582 (a) sebelum dan (b) sesudah sintering suhu 1150°C serta (c) hasil uji tetes air.

Tabel 4. 2. Perubahan dimensi pada membran BSCF 5582 setelah sintering suhu 1150 °C

Kondisi	Diameter (mm)	Tebal (mm)	Volume (mm <sup>3</sup> )
Awal	12,9	2,2	287,4
Akhir	11,65	1,7	181,1
Susut Bakar = 37,0 %			

Proses pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dengan metode *post-sintering* dilanjutkan dengan pelapisan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum pada permukaan atas membran datar BSCF 5582 yang telah rapat. Setelah proses pelapisan, terlihat suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum menempel pada permukaan membran BSCF 5582 sesuai dengan metode *pre-sintering* seperti terlihat pada Gambar 4.6 (a). Setelah proses pendiaman selama satu hari permukaan membran BSCF 5582 masih terdapat lapisan hitam yang cukup tebal berbeda dengan metode *pre-sintering*, dimana pada metode *pre-sintering* suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum terserap kebadan membran

BSCF 5582 berpori. Membran datar BSCF 5582 setelah proses sintering pada suhu  $1150^{\circ}\text{C}$  telah rapat sehingga mampu menahan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum agar tidak terserap kedalam membran BSCF 5582 seperti yang terlihat pada Gambar 4.6 (b). Proses dilanjutkan dengan kalsinasi pada suhu  $800^{\circ}\text{C}$  selama 3 jam. Proses kalsinasi ini akan menyebabkan bahan perekat amilum yang berupa senyawa organik akan terurai menjadi  $\text{CO}_2$  dan  $\text{H}_2\text{O}$  sehingga menyisakan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran. Proses kalsinasi ini menghasilkan butiran kecil berwarna hitam yang menempel pada permukaan membran BSCF yang diperkirakan merupakan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  seperti yang disajikan pada Gambar 4.6 (c). Sehingga, secara fisik dapat diketahui bahwa metode *post-sintering* dapat digunakan untuk pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582.

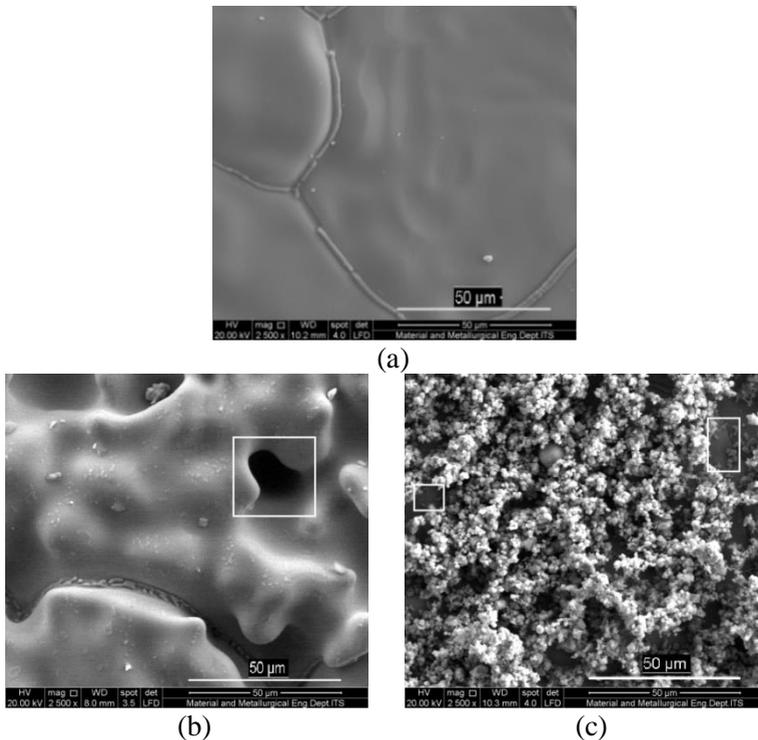


Gambar 4. 6 Membran BSCF 5582 (a) setelah pelapisan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum, (b) setelah pendiaman selama satu hari, dan (c) setelah proses kalsinasi suhu  $800^{\circ}\text{C}$

Secara fisik, metode *post-sintering* mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  lebih baik dibandingkan dengan metode *pre-sintering*. Metode *post-sintering* mampu menghasilkan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582 berupa lapisan butiran halus berwarna hitam. Sementara itu metode *pre-sintering* tidak mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dengan baik pada membran BSCF 5582

meskipun mampu memberikan sedikit perbedaan warna pada permukaan atas dan bawah BSCF 5582.

Pengamatan morfologi baik permukaan maupun penampang lintang serta analisis sebaran unsur pada penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dilakukan untuk mendukung data fisik yang didapat. Hasil pengamatan morfologi permukaan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 baik dari metode *pre-sintering* maupun *post-sintering* ditampilkan pada Gambar 4.7. Sebagai pembandingan dilakukan pengamatan pula pada membran datar BSCF 5582 tanpa proses pelapisan.

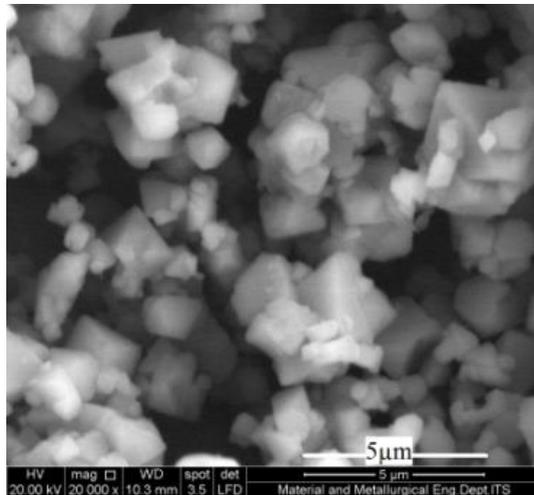


Gambar 4.7 Morfologi permukaan (a) membran datar BSCF 5582, membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dengan (b) metode *pre-sintering* dan (c) metode *post-sintering*.

Pengamatan morfologi permukaan membran datar BSCF 5582 hasil sintering pada suhu 1150°C menunjukkan membran datar BSCF 5582 memiliki permukaan yang rapat. Hal ini mendukung hasil uji tetes air yang dilakukan pada membran datar BSCF 5582. Hasil pengamatan morfologi permukaan membran datar BSCF 5582 sesuai dengan hasil yang dilaporkan oleh Fansuri dkk. (2017) dimana suhu sintering 1150°C mampu menghasilkan membran BSCF yang rapat.

Morfologi permukaan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan melalui metode *pre-sintering* terlihat tidak merata dan terdapat bagian berpori yang ditunjukkan dengan tanda kotak pada Gambar 4.7 (b). Namun, permukaan membran tersebut menunjukkan tidak adanya perbedaan yang berarti dengan membran BSCF 5582 murni, padahal telah dilapisi dengan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Partikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang dilapiskan pada permukaan membran tidak tampak pada gambar tersebut. Hal ini disebabkan karena terserapnya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum ke dalam badan membran. Kemungkinan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang terserap mengalami sintering sekaligus pencampuran/reaksi dengan membran BSCF sehingga tidak tampak menjadi partikel tersendiri yang tertempel di permukaan BSCF. Hasil penelitian Paul dkk. (2012) menunjukkan bahwa kobalt telah mengalami sintering pada suhu 1100°C dengan suhu sintering optimum 1300 °C.

Sementara itu, morfologi permukaan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan melalui metode *post-sintering* menunjukkan adanya lapisan butiran  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang cukup banyak pada permukaan membran. Hal ini menunjukkan metode *post-sintering* dapat melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582. Meskipun demikian persebaran lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  tidak merata, terlihat adanya beberapa bagian permukaan membran BSCF 5582 yang tidak terlapisi oleh lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  ditunjukkan dengan tanda kotak pada Gambar 4.7 (b). Lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  diamati lebih lanjut untuk mengetahui bentuk serta ukuran partikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang menempel pada permukaan membran BSCF 5582 seperti disajikan pada Gambar 4.8.

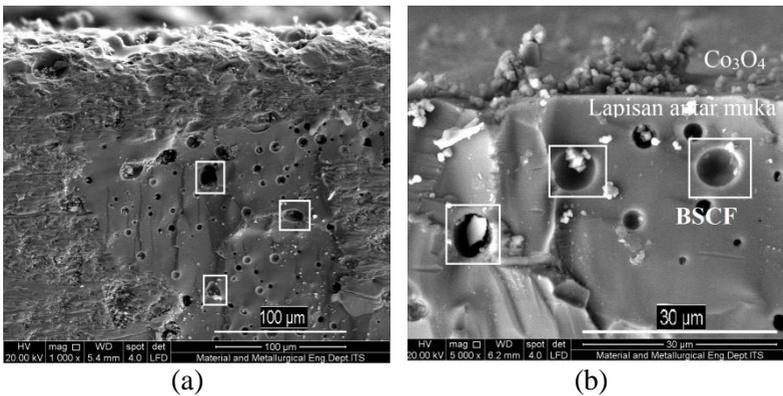


Gambar 4. 8 Morfologi lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran BSCF 5582

Gambar 4.8 menunjukkan adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  menempel pada permukaan membran dengan bentuk dasar kubus namun sedikit tidak teratur karena antar kristal saling berhimpitan satu sama lain. Ukuran kristal pun tidak homogen dengan panjang sisi antara  $0,97 - 2,08 \mu\text{m}$ . Bentuk dan ukuran kristal sangat dipengaruhi oleh proses nukleasi kristal selama proses sintesis (Kang dan Zhou. 2015).

Pengamatan penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 ditampilkan pada Gambar 4.9. Metode *pre-sintering* tidak menunjukkan adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran BSCF 5582. Hal ini disebabkan karena terserapnya material pelapis kedalam membran datar BSCF 5582 sehingga terjadi pencampuran antara  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dengan BSCF 5582. Sementara itu, metode *post-sintering* menunjukkan adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF 5582. Hal ini menunjukkan bahwa metode *post-sintering* mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF 5582. Sementara itu, penampang lintang membran datar BSCF 5582 pada kedua membran menunjukkan adanya pori yang ditunjukkan dengan tanda

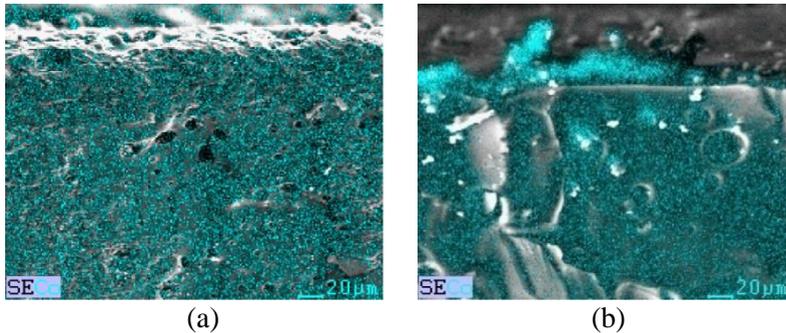
kotak. Namun pori sangat sedikit dan tidak terkoneksi satu sama lain sehingga secara umum membran tetap rapat. Keberadaan pori ini berasal dari sisa-sisa proses sintering partikel BSCF yang umumnya berukuran besar sehingga meninggalkan pori pada bagian tertentu ketika terjadi pelelehan dan penyatuan partikel. Sintesis oksida perovskit BSCF melalui metode *solid state* menghasilkan material dengan ukuran partikel yang besar dibandingkan dengan metode lain seperti metode sol-gel dan metode *sol-combustion* (Xu dkk., 2016)



Gambar 4. 9 Penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dengan metode (a) *Pre-sintering* dan (b) *post-sintering*.

Pemetaan unsur dengan SEM-EDX pada penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan dengan metode *pre-sintering* dan *post-sintering* selanjutnya dilakukan untuk mengkonfirmasi keberadaan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Hasil pemetaan unsur Co ditunjukkan pada Gambar 4.10. Pemetaan unsur Co kedua membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 menunjukkan perbedaan yang cukup signifikan, dimana pada metode *post-sintering* terdapat peningkatan intensitas Co yang cukup kuat pada bagian permukaan membran BSCF yang menunjukkan adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang terbentuk. Sementara itu pada metode *pre-sintering*

tidak terlihat adanya peningkatan intensitas Co yang menunjukkan bahwa unsur Co telah terserap didalam membran atau mengalami reaksi dengan BSCF 5582.



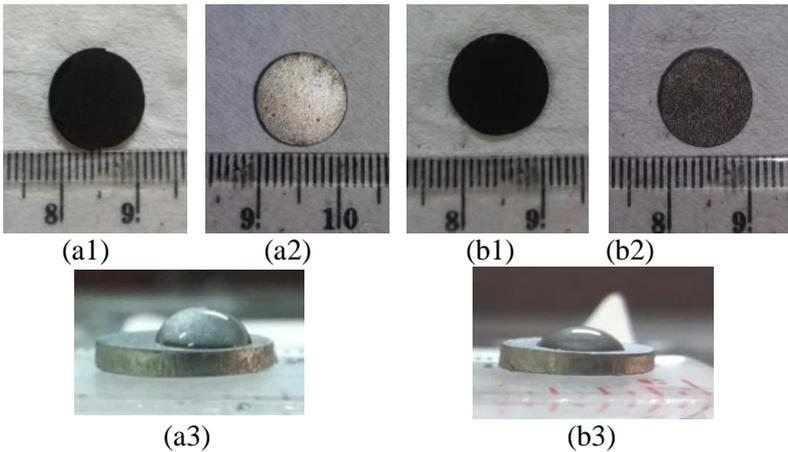
Gambar 4. 10 Pemetaan unsur pada membran membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 (a) metode *pre-sintering* dan (b) metode *post-sintering*.

Hasil analisis fisik, pengamatan morfologi permukaan dan penampang lintang, serta hasil pengamatan distribusi unsur pada membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 menunjukkan bahwa metode *post-sintering* mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  lebih baik dibandingkan metode *pre-sintering*. Hal ini menjadi dasar penggunaan metode *post-sintering* untuk pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382.

#### 4.4 Pembuatan Membran Datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 6482 dan $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 7382 dengan Metode *Post-sintering*

Metode *post-sintering* mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF 5582 sehingga metode ini dipilih untuk menyiapkan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382. Hasil sintering membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 menunjukkan perubahan warna yang sama dengan membran datar BSCF 5582 yaitu berubah dari warna hitam menjadi perak mengkilap. Hasil uji tetes air untuk kedua

membran pun menunjukkan hasil yang sama dengan membran datar BSCF 5582 yakni telah dihasilkan membran yang rapat setelah proses sintering pada suhu 1150°C. Membran sebelum dan sesudah sintering serta hasil uji tetes air untuk membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 ditunjukkan pada Gambar 4.11. Sementara itu, data susut bakar membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 disajikan pada Tabel 4.2.



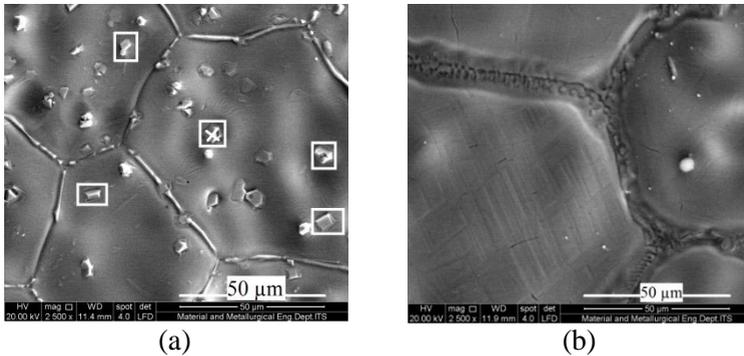
Gambar 4. 11 Membran datar BSCF 6482 (a1) sebelum sintering, (a2) sesudah sintering, dan (a3) hasil uji tetes air serta membran datar BSCF 7382 (b1) sebelum sintering, (b2) sesudah sintering, dan (b3) hasil uji tetes air

Tabel 4. 3 Data susut bakar membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382

Membran BSCF	Diameter (mm)		Tebal (mm)		Volume (mm <sup>3</sup> )		Susut Bakar (%)
	Awal	Akhir	Awal	Akhir	Awal	Akhir	
6482	12,7	11,6	2,4	1,7	383,9	278,5	40,9
7382	12,7	11,7	2,2	1,7	181,1	182,7	34,4

Berdasarkan tabel 4.1 dan 4.2, data susut bakar membran datar BSCF 6482 paling tinggi diantara ketiga membran yakni 40,9 %, diikuti oleh BSCF 5582 dan BSCF 7382 masing-masing 37,0 dan 34,4%. Hasil ini sesuai dengan hasil yang dilaporkan oleh Fansuri dkk, (2017). Sebelumnya, Utomo (2014) melaporkan bahwa  $Ba^{2+}$  dapat berperan sebagai material pelebur (*flux*) yang dapat menurunkan titik leleh suatu material. Peningkatan jumlah  $Ba^{2+}$  dalam BSCF xx82 menyebabkan proses sintering terjadi pada suhu relatif lebih rendah sehingga material menjadi lebih cepat lunak dan penyatuan partikel menjadi lebih cepat terjadi. Sebagai hasilnya, material secara keseluruhan menjadi lebih padat akibat dari penyatuan-penyatuan partikel yang intens selama proses sintering dan menghilangnya pori, sehingga volume material itu pun berkurang drastis. Hal inilah yang menyebabkan susut bakar membran datar BSCF 6482 lebih tinggi dibandingkan dengan BSCF 5582. Namun demikian, proses sintering membran BSCF xx82 juga menyebabkan terjadinya reduksi ion  $Co^{3+}/Co^{4+}$  dan/atau  $Fe^{3+}/Fe^{4+}$  yang menghasilkan gas oksigen. Gas oksigen yang dihasilkan terperangkap dalam tubuh membran yang telah melunak akibat proses sintering. Semakin banyak ion  $Ba^{2+}$  semakin lunak partikel membran pada saat sintering. Akibat partikel yang melunak tersebut, gas oksigen yang dihasilkan dari reduksi  $Co^{3+}/Co^{4+}$  dan/atau  $Fe^{3+}/Fe^{4+}$  lebih leluasa mendesak partikel BSCF sehingga menghasilkan gelembung dengan volume yang lebih besar. Pembentukan gelembung oleh gas oksigen ini akan menghasilkan rongga/pori berukuran besar pada badan membran sehingga memperbesar volume membran secara keseluruhan. Hal ini lah yang menyebabkan susut bakar membran BSCF 7382 lebih kecil daripada BSCF 6482 (Fansuri dkk., 2017).

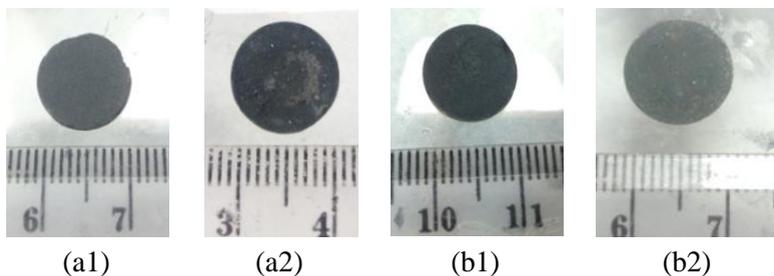
Kerapatan membran selanjutnya diamati dengan dengan SEM. Hal ini juga dilakukan untuk mendukung hasil uji tetes air yang telah dilakukan sebelumnya. Hasil SEM pada morfologi permukaan membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 disajikan pada Gambar 4.12. Hasil SEM menunjukkan bahwa permukaan kedua membran telah rapat layaknya membran BSCF 5582.



Gambar 4. 12 Morfologi permukaan membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382

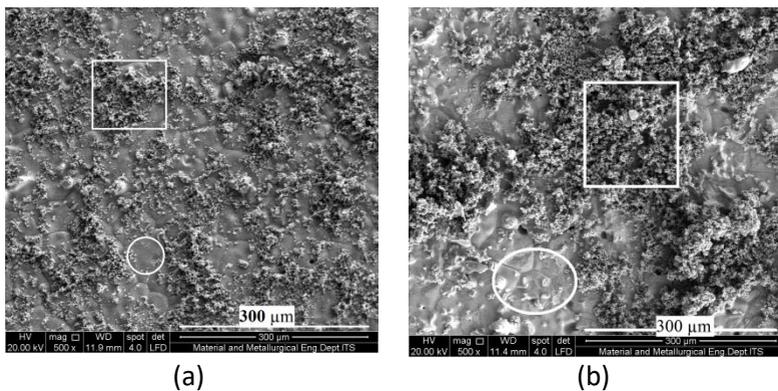
Namun demikian, pada permukaan membran datar BSCF 6482 terlihat adanya bintik-bintik (*spot*) yang ditunjukkan dengan tanda kotak pada Gambar 4.12 (a). Analisis unsur dengan EDX dilakukan untuk mengetahui kandungan unsur pada bintik (*spot*) tersebut dengan teknik *point* EDX (analisis pada titik tertentu di sampel). Hasil analisis unsur menunjukkan adanya unsur Ca pada titik tersebut. Unsur Ca diperkirakan berasal dari serpihan batu tahan api atau *refractory* didalam *muffle furnace* selama proses sintering berlangsung. Kalsium merupakan salah unsur penyusun batu tahan api yang banyak digunakan dalam furnace (Lukin and Serova., 1964).

Kerapatan membran menunjukkan membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 sudah dapat dilapisi dengan material pelapis suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum. Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 7382 sebelum dan sesudah kalsinasi ditunjukkan pada Gambar 4.13. Hasil pelapisan membran datar BSCF 6482 dan BSCF 7382 dengan material pelapis suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum secara fisik menunjukkan kesesuaian yang sama dengan hasil pelapisan suspensi  $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum pada membran datar BSCF 5582. Hasil kalsinasi membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ /BSCF 7382 menunjukkan adanya lapisan butiran halus berwarna hitam yang diperkirakan merupakan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ .



Gambar 4. 13 Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 (a1) sebelum kalsinasi dan (a2) sesudah kalsinasi serta membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 (b1) sebelum kalsinasi dan (b2) sesudah kalsinasi

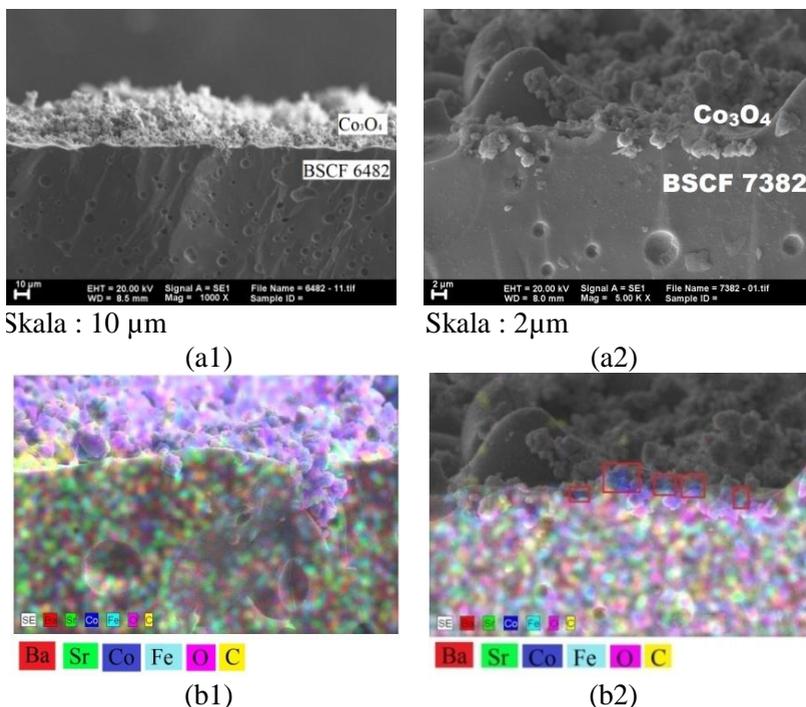
Pengamatan morfologi permukaan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 disajikan pada Gambar 4.14. Hasil tersebut menunjukkan kesesuaian dengan permukaan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582.



Gambar 4. 14 Pengamatan morfologi permukaan membran datar (a)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan (b)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382

Morfologi membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 menunjukkan adanya lapisan butiran  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF 6482. Demikian pula dengan morfologi membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 yang menunjukkan adanya lapisan butiran  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membrannya. Meskipun demikian sebaran partikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  tidak merata, terdapat beberapa bagian permukaan membran yang terlapisi  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dengan jumlah yang cukup banyak sementara ada bagian permukaan membran yang lain yang tidak terlapisi oleh butiran  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Tidak meratanya sebaran partikel  $\text{Co}_3\text{O}_4$  disebabkan suspensi material pelapis yang kurang homogen. Amilum sebagai bahan perekat dalam material pelapis memiliki ukuran partikel yang cukup besar yaitu  $2\text{--}8\mu\text{m}$  (Schulze-Kuppers dkk., 2013) dibandingkan dengan katalis  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang memiliki ukuran partikel  $0,97\text{--}2,08\mu\text{m}$ . Perbedaan ukuran ini membuat amilum dan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  tidak tercampur merata dalam suspensi material pelapis sehingga ada beberapa permukaan membran yang terlapisi dengan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dalam jumlah yang sedikit. Selain itu, penggunaan bahan perekat dalam jumlah yang banyak menyebabkan konsentrasi  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dalam suspensi pelapis menjadi kecil, sehingga ketika bahan perekat dihilangkan melalui proses kalsinasi, hanya menyisakan sedikit lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Jumlah bahan perekat harus berada dalam jumlah sesedikit mungkin untuk mendapatkan lapisan pelapis yang baik (Kim dkk., 2016).

Pengamatan selanjutnya dilakukan pada penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382. Hasil foto SEM penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 disajikan pada Gambar 4.15 (a1) dan (a2) Sementara itu analisis sebaran unsur pada penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 disajikan pada Gambar 4.15 (b1) dan (b2). Gambar 4.15 mengkonfirmasi keberadaan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran rapat BSCF 6482 dan BSCF 7382.



Gambar 4. 15 Penampang lintang membran datar (a1)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 , (a2)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 , pemetaan unsur (b1)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan (b2)  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382

Penampang lintang membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 maupun  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 menunjukkan sebaran unsur Ba, Sr, dan Fe yang merata pada bagian membran datar BSCF 6482. Namun demikian, terdapat peningkatan intensitas persebaran Co dan O pada permukaan membran yang menunjukkan adanya lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang menempel pada permukaan membran. Hasil ini sesuai dengan persebaran unsur Co pada membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582. Hasil ini juga menunjukkan bahwa membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582,  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482 dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 telah berhasil dibuat dan dapat digunakan untuk uji fluks oksigen.

#### 4.5 Permeabilitas Oksigen

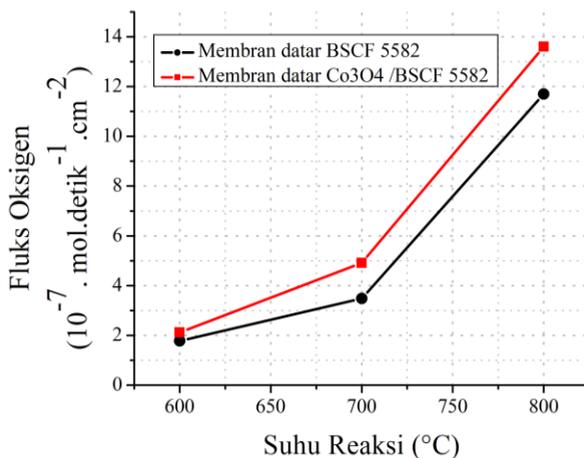
Kemampuan membran dalam memisahkan oksigen (permeabilitas oksigen) dinyatakan dalam bentuk fluks oksigen. Fluks oksigen menyatakan jumlah oksigen yang mampu terpermeasi melewati membran persatuan waktu dan luas (Chen dkk., 2015). Uji fluks oksigen pada membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan dengan metode *post-sintering* dilakukan untuk mengetahui pengaruh penambahan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran BSCF. Uji fluks oksigen dilakukan dengan rangkaian reaktor seperti pada Gambar 3.2. Reaktor uji fluks ini memiliki cara kerja yang sama dengan reaktor yang digunakan oleh Li dkk. (2015).

Membran BSCF 5582 ditempelkan diatas pipa kuarsa berdiameter 0,75 cm kemudian disegel dengan lem pasta perak untuk menempelkan membran dengan pipa kuarsa serta menghindari kebocoran pada membran. Sambungan antara pipa dan membran kemudian diperkuat dengan penambahan lem keramik. Penambahan lem keramik juga berfungsi untuk menghindari kebocoran. Sisi atas membran disebut dengan sisi umpan. Pada sisi umpan diberikan gas umpan berupa udara atau *compressed air* yang dialirkan dengan laju  $150 \text{ mL} \cdot \text{menit}^{-1}$ . Udara berfungsi sebagai sumber oksigen. Sisi permeal dialiri dengan gas helium dengan aliran  $30 \text{ mL} \cdot \text{menit}^{-1}$  yang akan membawa oksigen dari sisi permeal untuk dianalisis dengan kromatografi gas (*Gas Chromatography/GC*). Gas hasil reaksi kemudian dialirkan secara langsung atau *Online* ke GC.

Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 juga dirangkai dengan rangkaian yang sama. Sisi lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  berada pada sisi umpan. Hal ini karena lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  ditujukan untuk mempercepat reaksi pertukaran molekul oksigen menjadi ion oksigen pada permukaan membran yang terjadi melalui reaksi perubahan oksigen (*Oxygen Evolution Reaction/OER*). Kobalt oksida terbukti memiliki kekosongan oksigen yang terkontrol sehingga memiliki performa OER yang baik (Xu dkk., 2018).

Uji fluks oksigen pada membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 dilakukan pada variasi suhu

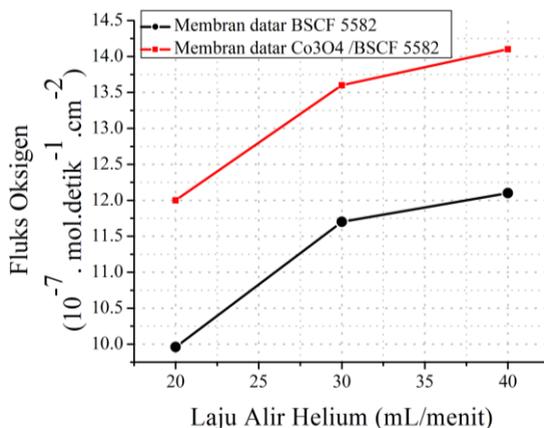
reaksi 600,700, dan 800 °C untuk melihat pengaruh suhu reaksi terhadap nilai fluks oksigen yang dihasilkan. Grafik fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada beberapa variasi suhu reaksi disajikan pada Gambar 4.16. Nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada suhu 600, 700 dan 800°C secara berturut-turut adalah  $1,78 \cdot 10^{-7}$ ;  $3,48 \cdot 10^{-7}$  dan  $1,17 \cdot 10^{-6}$  mol.detik<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>. Sementara itu nilai fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada suhu reaksi 600, 700 dan 800°C secara berturut-turut adalah  $2,12 \cdot 10^{-7}$ ;  $4,91 \cdot 10^{-7}$  dan  $1,36 \cdot 10^{-6}$  mol.detik<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>. Nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582 meningkat seiring dengan peningkatan suhu reaksi begitu pula dengan nilai fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582. Peningkatan terbesar sebesar 1,41 kali terjadi pada suhu 700°C dimana nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 secara berturut-turut adalah  $3,48 \cdot 10^{-7}$  dan  $4,91 \cdot 10^{-7}$  mol.detik<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>.



Gambar 4. 16 Fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada variasi suhu reaksi.

Hasil uji fluks menunjukkan bahwa penambahan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  mampu meningkatkan laju reaksi permeasi oksigen karena  $\text{Co}_3\text{O}_4$  merupakan katalis OER yang baik (Xu dkk., 2016) sehingga mampu mempercepat terjadinya reaksi pertukaran oksigen. Selain itu lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang berbentuk butiran mampu memperluas luas permukaan tempat terjadinya reaksi pertukaran oksigen sehingga semakin banyak oksigen yang dapat terpermeasi. Hal ini sesuai dengan hasil penelitian yang dilaporkan Li dkk. (2015) dan Wang dkk. (2017) dimana penambahan katalis  $\text{Co}_3\text{O}_4$  mampu meningkatkan permeabilitas membran BSCF 5582.

Selain suhu reaksi, tekanan parsial oksigen juga mempengaruhi nilai fluks oksigen membran. Cai dkk. (2016) menyatakan bahwa permeasi oksigen dipengaruhi oleh konduktivitas membran baik konduktivitas ionik maupun elektronik serta tekanan parsial oksigen ketika proses difusi fasa ruah terjadi. Oksigen akan mengalir dari tekanan parsial oksigen yang tinggi ke tekanan parsial oksigen yang rendah hal ini sesuai dengan sifat gas pada umumnya. Perbedaan tekanan parsial pada sisi permeal dan sisi umpan akan menyebabkan adanya daya dorong atau *driving force* yang menyebabkan oksigen akan terdorong melewati membran dari sisi umpan dengan tekanan parsial oksigen yang tinggi menuju sisi permeal yang memiliki tekanan parsial oksigen yang rendah (Geffroy dkk., 2011). Peningkatan *driving force* dapat dilakukan dengan mengatur laju alir gas penyapu pada sisi permeal (Schulze-Kuppers dkk., 2013). Semakin tinggi laju alir gas penyapu semakin kecil tekanan parsial oksigen disisi permeal (Cai dkk., 2016). Hasil uji fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada variasi laju alir helium disajikan pada Gambar 4. 17.



Gambar 4. 17 Fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 pada variasi laju alir helium

Fluks oksigen membran datar BSCF 5582 dan membran datar Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BSCF 5582 meningkat seiring dengan meningkatnya laju alir helium. Hal ini disebabkan karena meningkatnya *driving force* akibat dari semakin rendahnya tekanan parsial oksigen pada sisi permeal seiring dengan meningkatnya laju alir helium. Kedua membran menunjukkan kenaikan fluks oksigen seiring dengan meningkatnya laju alir helium, namun peningkatan fluks oksigen pada laju alir helium 40 ml.menit<sup>-1</sup> tidak menunjukkan peningkatan yang signifikan. Hal ini karena setiap membran MIEC memiliki batas kemampuan dalam menyalurkan oksigen, sehingga meskipun faktor-faktor peningkat fluks oksigen dinaikan maka tidak akan berpengaruh banyak pada fluks oksigen yang dihasilkan. Meskipun demikian penambahan lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> mampu meningkatkan fluks permeasi membran datar BSCF 5582 pada semua variasi laju alir helium. Hasil uji fluks oksigen pada kedua membran menunjukkan adanya peningkatan nilai fluks oksigen akibat penambahan lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pada variasi suhu dan laju alir helium, hal ini menunjukkan lapisan Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> mampu meningkatkan kinerja membran BSCF 5582.

*“Halaman ini sengaja dikosongkan”*

## **BAB V**

### **KESIMPULAN**

#### **5.1 Kesimpulan**

Kesimpulan dari penelitian ini adalah metode *post-sintering* mampu melapiskan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar BSCF 5582 dengan bahan perekat amilum lebih efektif dibandingkan metode *pre-sintering*. Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 yang disiapkan dengan metode *post-sintering* memiliki lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  yang jelas pada permukaan sebagaimana hasil pengamatan dengan SEM-EDX.  $\text{Co}_3\text{O}_4$  tidak tampak pada permukaan membran yang disiapkan dengan metode *pre-sintering*. Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  juga berhasil dilakukan pada komposisi BSCF 6482 dan BSCF 7382. Namun, lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada ketiga permukaan membran BSCF tersebar kurang merata.

Lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 mampu meningkatkan laju permeasi oksigen dibandingkan dengan membran datar BSCF 5582. Membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 memiliki nilai fluks oksigen lebih tinggi dibandingkan membran datar BSCF 5582 pada seluruh variasi kondisi reaksi baik suhu reaksi maupun laju alir gas pembawa.

#### **5.2 Saran**

Penelitian ini mengamati metode pelapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  pada permukaan membran datar BSCF serta pengaruhnya terhadap nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582. Pengaruh penambahan lapisan  $\text{Co}_3\text{O}_4$  terhadap nilai fluks oksigen pada komposisi membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  yang lain perlu dilakukan untuk mengetahui pengaruh perbedaan komposisi membran BSCF yang digunakan.

*“Halaman ini sengaja dikosongkan”*

## DAFTAR PUSTAKA

- Artini, C. (2017), "Crystal chemistry, stability, and properties of interlanthanide perovskite : A review", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 37, Hal. 427-440.
- Athayde, D. D., Souza, D. F., Silva, A. M. A., Vasconcelos, D., Nunes, E. H. M., Diniz da Costa, J. C. dan Vasconcelos, W. L. (2016), "Review of perovskite ceramic synthesis and membrane preparation methods", *Ceramic International*, Vol. 42, Hal. 6555-6571.
- Babakhani, E. G., Towfighi, J., Shirazi, L., dan Pour, A. N. (2011), "Order-disorder transition and phase stability of  $Ba_xSr_{1-x}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-\delta}$  Oxides", *Journal of Membrane Science*, Vol. 376, Hal. 78-82.
- Basile, A. dan Gallucci, F.(2011), *Membranes for Membrane Reactors : Preparation, Optimization and Selection*, United Kingdom: John Wiley and Sons Incorporation.
- Bouwmeester, H. J. M. (2003), "Dense Ceramic Membranes for Methane Conversion", *Catalysis Today*, Vol. 82, Hal. 141-150.
- Cai, L., Li, W., Cao, Z., Zhu, X., Yang, W. (2016), "Improving oxygen permeation of MIEC membrane reactor by enhancing the electronic conductivity under intermediate-low oxygen partial pressures", *Journal of Membrane Science*, Vol. 520, Hal. 607-615.
- Chang, X., Zhang, C., Dong, X., Yang, C., Jin. Dan Xu, N. (2008), "Experimental and Modelling Study of Oxygen Permeation Modes for Asymmetric Mixed-Conducting Membranes", *Journal of Membrane Science*, Vol. 322, Hal. 429-435.
- Chen, Z., Shao, Z., Ran, R., Zhou, W., Zheng, P., dan Liu, S.(2007), "A Dense Oxygen Separation Membrane With A Layered Morphologic Structure", *Journal of Membrane Science*, Vol. 300, Hal. 182-190.
- Chen, W., Nauels, N., Bouwmeester, H. J. M., Nijmeijer, A., dan Winnubst, L. (2015), "An Accurate Way to Determine

- The Ionic Conductivity of Mixed ionic-electronic Conducting (MIEC) Ceramics”, *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 35, Hal. 3075-3083.
- Darab, M. (2008), “Synthesis and Characterization of Nanostructured Cathode Material (BSCF) for Solid Oxide Fuel Cells”, Thesis, Master of Science in Nanomaterial and Nanotechnology, Department of Information and Communication Technology, Royal Institute of Technology (KTH), Stockholm.
- Fansuri, H., Syafi'i, M. I., Romdoni, S., Masyitoh, A. D., Utomo, W. P., Prasetyoko, D., Widiastuti, N., Murwani, I. K. S. (2017), “Preparation of Dense  $Ba_xS_{-1-x}Co_{0.8}Fe_{0.2}O_3$  Membranes: Effect of  $Ba^{2+}$  Substituents and Sintering Method to The Density, Hardness and Thermal Expansion Coefficient of The Membranes”, *Advanced Materials Letters*, Vol. 8(7), Hal. 799-806.
- Faraji, S., Nordheden, K. J., dan Stagg-Williams, S. M. (2010), “A Comparative Study of  $Ba_{0.5}Sr_{0.5}Co_{0.8}Fe_{0.2}O_{3-\delta}$  (BSCF) and  $SrFeCo_{0.5}O_x$  (SFC) Ceramic Membranes Used for Syngas Production”, *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 99, Hal. 118-126.
- Geffroy, P. M., Fouletier, J., Richet, N., Chartier, T. (2013), “Rational selection of MIEC materials in energy production process”, *Chemical Engineering Science*, Vol. 87, Hal. 408-433.
- Harmelia, L., Fansuri, H., Utomo, W. P. (2018), “Pelapisan Campuran  $NiO-CeO_2$  pada Membran Keramik  $La_{0,6}Sr_{0,4}Co_{0,2}Fe_{0,8}O_{3-\delta}$ ,  $La_{0,7}Sr_{0,3}Co_{0,2}Fe_{0,8}O_{3-\delta}$ , dan  $La_{0,7}Sr_{0,3}MnO_{3\pm\delta}$ ”, *Jurnal Sains dan Seni ITS*, Vol. 7, Hal. 5-9
- Hayamizu, Y., Kato, M., dan Takamura, H. (2014), “Effects of Surface modification on the oxygen permeation BSCF membrane”, *Journal of Membrane Science*, Vol. 462, Hal. 147-152.
- Heath, J. (2015), *Energy Dispersive Spectroscopy*, West Sussex : Willey

- Kang, Min. dan Zhou, Hai. (2015), "Facile Synthesis and Structural Characterization of  $\text{Co}_3\text{O}_4$  Nanocubes", *AIMS Materials Science*, Vol. 2, Hal. 16-27.
- Kim, S. (1999), "Oxygen surface exchange in mixed ionic electronic conductor membranes", *Solid State Ionics*, Vol. 121, Hal. 31-36.
- Kong, L.B., Zhang, T.S., Ma, J. dan Boey. (2008), "Progress in Synthesis of Ferroelectric Ceramic Materials Via High-Energy Mechanochemical Technique", *Progress in Material Science*, Vol. 53, Hal. 207-322.
- Leo, A., Liu, S, dan Diniz da Costa, J. (2009), "The enhancement of oxygen flux on  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (BSCF) hollow fibers using silver surface modification", *Journal of Membrane Science*, Vol. 340, Hal. 148-153.
- Leo, A, Motuzas, J., Yacou, C., Liu, S., Serra, J. M., Navarette, L., Dremann, J., Julbe, A., dan Diniz da Costa, J. C. (2017), "Copper oxide - perovskite mixed matrix membranes delivering very high oxygen fluxes", *Journal of Membrane Science*, Vol. 5, Hal. 323-333.
- Leo, A., Smart, S., Liu, S., dan Costa, J. (2011), "High Performance perovskite hollow fibers for oxygen separation", *Journal of Membrane Science*, Vol. 368, Hal. 64-68.
- Li, S., C, J., Gan, Y., Zhang, X. dan Wang, Yu. (2015), "Enhancing the oxygen permeation rate of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  membranes by surface loading  $\text{Co}_3\text{O}_4$  nanorod catalysts", *Surface and Coating Technology*, Vol. 276, hal. 47-45
- Lukin, Y. S. dan Serova, G. A. (1964), *Certain Properties of Calcium Oxide Refractories*, Ohio : Wright-Patterson System Command.
- Maulidah, N. (2010), "Sintesis Dan Karakterisasi Oksida Perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,0 \leq x, y \leq 0,5$ ) Dengan Metode Solid-State" Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.

- McIntosh, S., Vente, J. F., Haije, W. G., Blank, D. H. A., dan Bouwmeester, H. J. M. (2006), "Structure and oxygen stoichiometry of  $\text{SrCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  and  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ ", *Solid State Ionics*, Vol. 177, Hal. 1737–1742.
- Or, D. dan Tuller, M. (2003), "Capillarity", Department of Civil and Environmental Engineering, University of Connecticut, USA.
- Ovenstone, J., Jung, J. II, White, J. S., Edwards, D. D., dan Misture, S. T. (2008), "Phase stability of BSCF in low oxygen partial pressures", *Journal of Solid State Chemistry*, Vol. 181, Hal. 576–586.
- Paul, B., Verma, A., Bidaye, A. C., Hubli, R. C., dan Suri, A. K. (2012), "Optimization of Sintering Parameters of Submicron Cobalt Metal Powder Using Taguchi Method", *Journal of Metallurgical Engineering*. Vol. I, Hal. 23-29.
- Park, J.H., Kim, J.P., Kwon, H.T. dan Kim, J. (2008), "Oxygen Permeability, Electrical Property and Stability of  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  Membrane", *Desalination*, Vol. 233, hal. 73-81.
- Park, S H., Magnone, E. dan Park, J H. (2017), "Further improvements in oxygen permeation of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.5}\text{Ti}_{0.3}\text{Fe}_{0.7}\text{O}_{3-\delta}$  coated  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  hollow fiber membrane", *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, Vol. 56, Hal. 350-354.
- Rachadel, P. L., Motuzas, J., Ji, G., Hotza, D., & Diniz da Costa, J. C. (2014), "The effect of non-ionic porous domains on supported  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  membranes for  $\text{O}_2$  separation", *Journal of Membrane Science*, Vol. 454, Hal. 382–389.
- Rachadel, P L., Motuzas, J., Mochado, R A F., Hotza, D., dan Diniz da Costa, J C. (2017), "Influence of porous structures on  $\text{O}_2$  flux of BSCF asymmetric

- membranes”, *Separation and Purification Technology*, Vol. 175, Hal. 164-169.
- Sadiek, I. M., Mohammad, A. M., El-shakre, M. E., Awad, M. I., El-Deab, M. S., dan Bahgat, E. E. (2012), “Electrocatalytic Evolution of Oxygen Gas at Cobalt Oxide Nanoparticles Modified Electrodes”, *International Journal of Electrochemical Sciences*, Vol. 7, Hal. 3350-3361.
- Schulze-Kuppers, F., Baumann, S., Meulenber, W. A., Stover, D., dan Buchkremer, H.-P. (2013), “Manufacturing and Performance of advanced supported BSCF oxygen transport membranes”, *Journal of Membrane Science*, Vol. 433, Hal. 121-125.
- Shao, Z., Dong, H., Xiong, G., Cong, Y. dan Yang, W. (2001 b), “Performance of A Mixed-Conducting Ceramic Membrane Reactor with High Oxygen Permeability for Methane Conversion”, *Journal of Membrane Science*, Vol. 183, Hal. 181-192.
- Shao, Z., Xiong, G., Tong, J., Dong, H. dan Yang, W. (2001 a), “Ba Effect in Doped  $\text{Sr}(\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2})\text{O}_{3-\delta}$  on the Phase Structure and Oxygen Permeation Properties of the Dense Ceramic Membranes”, *Separation and Purification Technology*, Vol. 25, Hal. 419-429.
- Sunarso, J., Baumann, S., Serra, J. M., Meulenber, W. A., Liu, S., Lin, Y, S. dan Diniz da Costa, J, C. (2008), “Mixed ionic-electronic conducting (MIEC) ceramic-based membranes for oxygen separation”, *Journal of Membrane Science*, Vol. 320, Hal. 13-41.
- Sunarso, J., Hashim, S. S., Zhu, N., Zhou, W. (2017), “Perovskite oxides applications in high temperature oxygen separation, solid oxide fuel cell and membrane reactor: A review”, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 61, Hal. 55-77.
- Syafi'i, M. I. (2016), “Optimasi teknik sintering membran rapat simetris BSCF 5582, 6482, dan 7382 beserta karakterisasi sifat mekaniknya,” Tugas Akhir, Departemen Kimia, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.

- Tan, X dan Li, K. (2013), *Dense Ceramic Membranes for Membrane Reactor*, Monash University : woodhead publishing limited.
- Teraoka, Y., Zhang, H., Furukawa, S., Yamazoe, N. (1985), "Oxygen Permeation Through Perovskite-type Oxides", *Chemistry Letter*, Hal. 1743-1746.
- Utomo, W. P. (2014), "Kajian permeabilitas ion oksigen pada membran rapat asimetris  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7382),  $\text{SrCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (SCF 182), dan  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (BSCF 5582)", Tesis Kimia, FMIPA-ITS, Surabaya.
- Waindich, A., Möbius, A., dan Müller, M. (2009), "Corrosion of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  and  $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  materials for oxygen separating membranes under Oxycoal conditions", *Journal of Membrane Science*, Vol. 337, Hal. 182–187.
- Wang, Li., Dou, Rui., Wang, Gong., Bai, Mingwen., Hall, David., Chen, Ying. (2018), "A case study of mechanical properties of xperovskite-structured  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  oxygen transport membrane," *Journal of European Ceramic Society*, Vol. 38, Hal. 647-653.
- Wang, Y., Cheng, J., Huang, M., Liu, M., Li, M., dan Xu, C. (2017), "Effects of surface modification with  $\text{Co}_3\text{O}_4$  nanoparticles on the oxygen permeability of BSCF membranes", *Applied Surface Science*, Vol. 416, Hal. 574-580.
- West, A. R. (1984), *Solid state chemistry and it's applications*, Scotland: John Willey and Sons.
- Xu, X., Pan, Y., Zhou, W., Chen, Y., Zhang, Z., dan Shao, Z. (2016), "Toward Enhanced Oxygen Evolution on Perovskite Oxides Synthesized from Different Approaches: A Case Study of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ ", *Electrochimica Acta*, Vol. 219, Hal. 553-559.
- Xu., Wenjing., Lyu, Fenglei., Bai, Yaocai., Gao, Aiqin., Feng, Ji., Cai, Zhiziong., dan Yiu, Yadong. (2018), "Porous cobalt

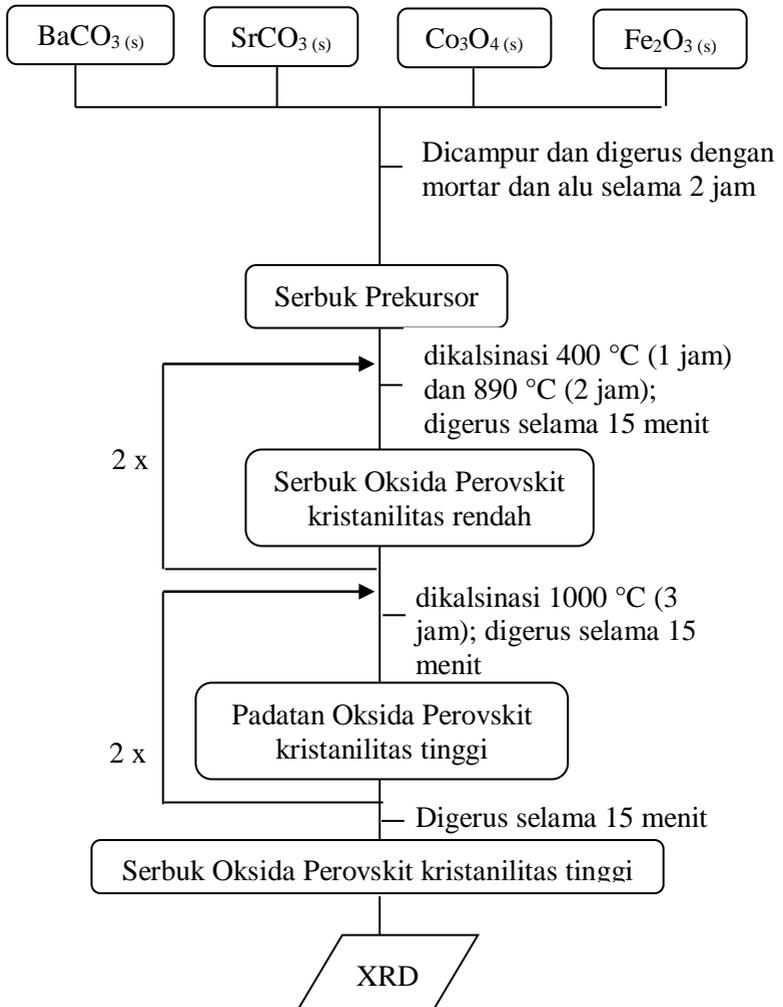
- oxide nanoplates enriched with oxygen vacancies for oxygen evolution reaction”, *Nano Energy*, Vol. 43, Hal. 110-116.
- Yacou, C., Sunarso, J., Lina, C., Smart, S., Liu, S., Costa, L. (2011), “Palladium Surface Modified  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  Hollow Fibers for Oxygen Separation”, *Journal of Membrane science*, Vol. 380, Hal. 223-231.
- Zhao, H., Shen, W., Zhu, Z., Li, X., dan Wang, Z. (2008), “Preparation and properties of  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-\delta}$  cathode material for intermediate temperature solid oxide fuel cell”, *Journal of Power Sources*, Vol. 182, Hal. 503–509.
- Zhuang, L., Ge, L., Yang, Y., Li, M., Jia, Y., Yao, X., dan Zhu, Z. (2017), Ultrathin Iron-Cobalt Oxide Nanosheets with Abundant Oxygen Vacancies for the Oxygen Evolution Reaction,” *Advanced Materials*.
- Zhu, Xuefeng dan Yang, Weishen. (2016), *Mixed Conducting Ceramic Membranes: Fundamental, Materials, and Application*, Springer.

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***

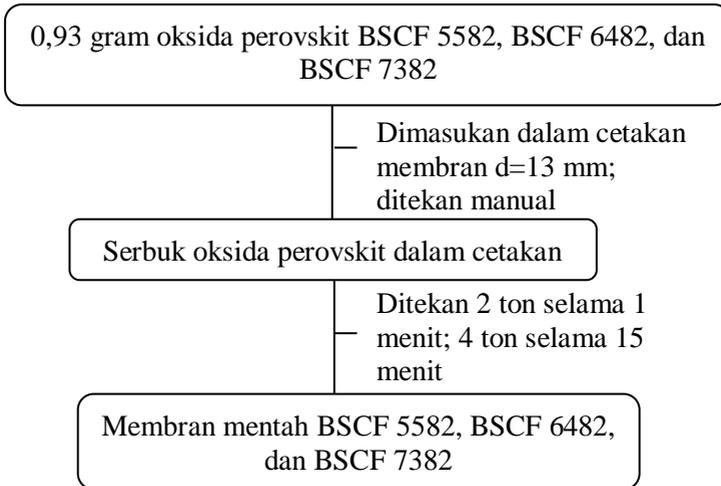
## LAMPIRAN

### LAMPIRAN A SKEMA KERJA

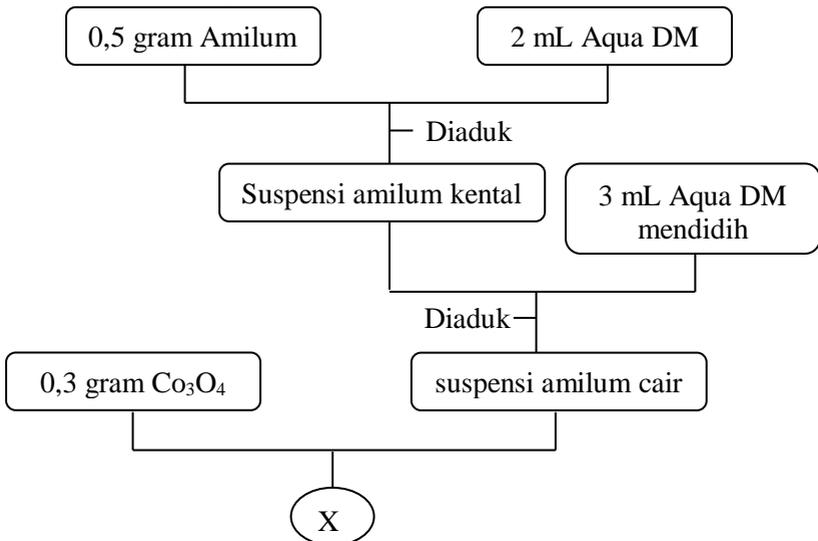
#### 1. Sintesis Oksida Perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, BSCF 7382

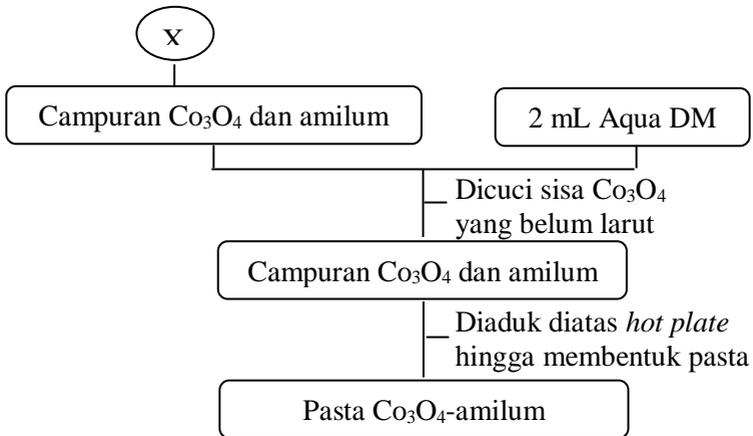


## 2. Pembuatan Membran Datar Oksida Perovskit BSCF 5582, BSCF 6482, BSCF 7382

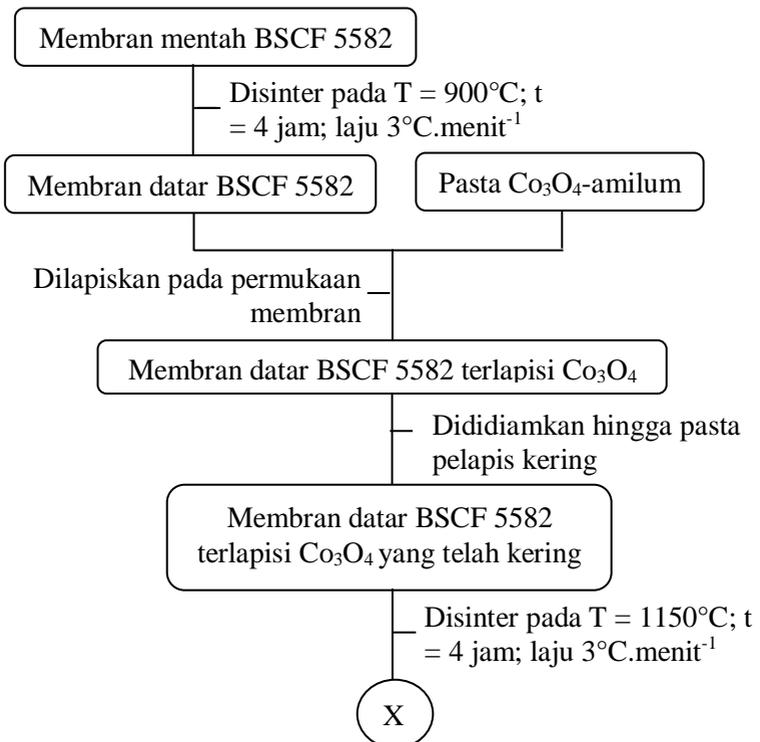


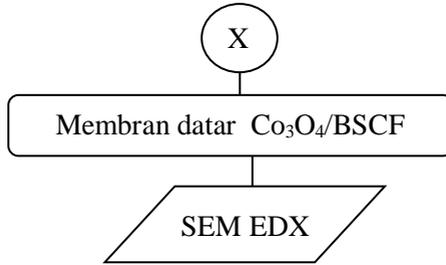
## 3. Pembuatan Suspensi Pelapis $\text{Co}_3\text{O}_4$ -amilum



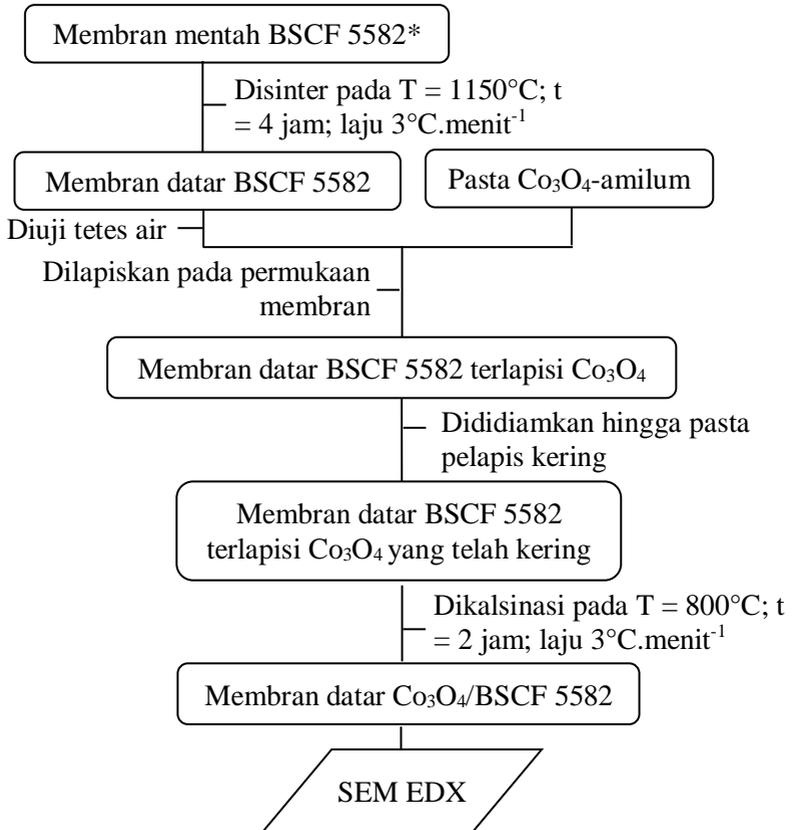


**4. Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF 5582}$  dengan metode *pre-sintering***





**5. Pembuatan membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582,  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  6482, dan  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  7382 dengan metode *post-sintering***



\*diulangi untuk membran BSCF 6482 dan BSCF 7382

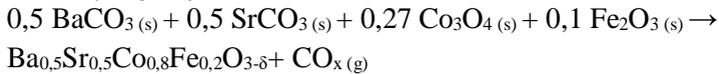
## LAMPIRAN B

### PERHITUNGAN

#### 1. Perhitungan Reaktan Sintesis Oksida Perovskit

##### a. Perhitungan stoikhiometri BSCF 5582

- Reaksi yang terjadi



- Data berat molekul

$$\text{Mr Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta} = 218,7928 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr BaCO}_3 = 197,3 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,6 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Co}_3\text{O}_4 = 240,7 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Fe}_2\text{O}_3 = 159,6 \text{ g/mol}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 30 gram.
- Perhitungan mol BSCF 5582

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{\text{Mr}} \\ &= \frac{30 \text{ g}}{218,7928 \text{ g/mol}} \\ &= 0,137 \text{ mol} \end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- BaCO<sub>3</sub>

$$\begin{aligned} \text{Mol BaCO}_3 &= 0,5 \times 0,137 \text{ mol} \\ &= 0,068 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Massa BaCO}_3 &= \text{mol BaCO}_3 \times \text{Mr BaCO}_3 \\ &= 0,068 \text{ mol} \times 197,3 \text{ g/mol} \\ &= 13,529 \end{aligned}$$

- SrCO<sub>3</sub>

$$\begin{aligned} \text{Mol SrCO}_3 &= 0,5 \times 0,137 \text{ mol} \\ &= 0,068 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Massa SrCO}_3 &= \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3 \\ &= 0,068 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} \\ &= 10,121 \text{ g} \end{aligned}$$

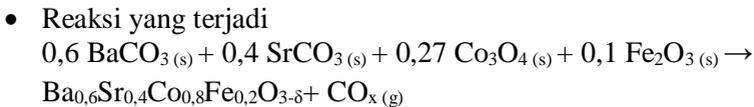
- $\text{Co}_3\text{O}_4$ 

$$\begin{aligned} \text{Mol Co}_3\text{O}_4 &= 0,27 \times 0,137 \text{ mol} \\ &= 0,036 \text{ mol} \\ \text{Massa Co}_3\text{O}_4 &= \text{mol Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr Co}_3\text{O}_4 \\ &= 0,036 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol} \\ &= 8,800 \text{ g} \end{aligned}$$

- $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 

$$\begin{aligned} \text{Mol Fe}_2\text{O}_3 &= 0,1 \times 0,137 \text{ mol} \\ &= 0,013 \text{ mol} \\ \text{Massa Fe}_2\text{O}_3 &= \text{mol Fe}_2\text{O}_3 \times \text{Mr Fe}_2\text{O}_3 \\ &= 0,013 \text{ mol} \times 159,6 \text{ g/mol} \\ &= 2,189 \text{ g} \end{aligned}$$

b. Perhitungan stoikhiometri BSCF 6482



- Data berat molekul
 
$$\begin{aligned} \text{Mr Ba}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta} &= 223,7648 \text{ g/mol} \\ \text{Mr BaCO}_3 &= 197,3 \text{ g/mol} \\ \text{Mr SrCO}_3 &= 147,6 \text{ g/mol} \\ \text{Mr Co}_3\text{O}_4 &= 240,7 \text{ g/mol} \\ \text{Mr Fe}_2\text{O}_3 &= 159,6 \text{ g/mol} \end{aligned}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 30 gram.
- Perhitungan mol BSCF 6482

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{Mr} \\ &= \frac{30 \text{ g}}{223,7648 \text{ g/mol}} \\ &= 0,134 \text{ mol} \end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- BaCO<sub>3</sub>

$$\begin{aligned} \text{Mol BaCO}_3 &= 0,6 \times 0,134 \text{ mol} \\ &= 0,080 \text{ mol} \\ \text{Massa BaCO}_3 &= \text{mol BaCO}_3 \times \text{Mr BaCO}_3 \\ &= 0,080 \text{ mol} \times 197,3 \text{ g/mol} \\ &= 15,875 \text{ g} \end{aligned}$$

- SrCO<sub>3</sub>

$$\begin{aligned} \text{Mol SrCO}_3 &= 0,4 \times 0,134 \text{ mol} \\ &= 0,054 \text{ mol} \\ \text{Massa SrCO}_3 &= \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3 \\ &= 0,054 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} \\ &= 7,917 \text{ g} \end{aligned}$$

- Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

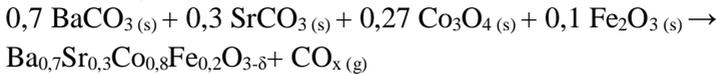
$$\begin{aligned} \text{Mol Co}_3\text{O}_4 &= 0,27 \times 0,134 \text{ mol} \\ &= 0,036 \text{ mol} \\ \text{Massa Co}_3\text{O}_4 &= \text{mol Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr Co}_3\text{O}_4 \\ &= 0,036 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol} \\ &= 8,609 \text{ g} \end{aligned}$$

- Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

$$\begin{aligned} \text{Mol Fe}_2\text{O}_3 &= 0,1 \times 0,134 \text{ mol} \\ &= 0,0134 \text{ mol} \\ \text{Massa Fe}_2\text{O}_3 &= \text{mol Fe}_2\text{O}_3 \times \text{Mr Fe}_2\text{O}_3 \\ &= 0,0134 \text{ mol} \times 159,6 \text{ g/mol} \\ &= 2,141 \text{ g} \end{aligned}$$

## c. Perhitungan stoikhiometri BSCF 7382

- Reaksi yang terjadi



- Data berat molekul

$$\text{Mr Ba}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta} = 223,7648 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr BaCO}_3 = 197,3 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,6 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Co}_3\text{O}_4 = 240,7 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Fe}_2\text{O}_3 = 159,6 \text{ g/mol}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 30 gram.
- Perhitungan mol BSCF 5582

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{\text{Mr}} \\ &= \frac{30 \text{ g}}{228,7366 \text{ g/mol}} \\ &= 0,131 \text{ mol} \end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- $\text{BaCO}_3$

$$\text{Mol BaCO}_3 = 0,7 \times 0,131 \text{ mol}$$

$$= 0,091 \text{ mol}$$

$$\text{Massa BaCO}_3$$

$$= \text{mol BaCO}_3 \times \text{Mr BaCO}_3$$

$$= 0,091 \text{ mol} \times 197,3 \text{ g/mol}$$

$$= 18,118 \text{ g}$$

- $\text{SrCO}_3$

$$\text{Mol SrCO}_3 = 0,3 \times 0,134 \text{ mol}$$

$$= 0,039 \text{ mol}$$

$$\text{Massa SrCO}_3$$

$$= \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3$$

$$= 0,039 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol}$$

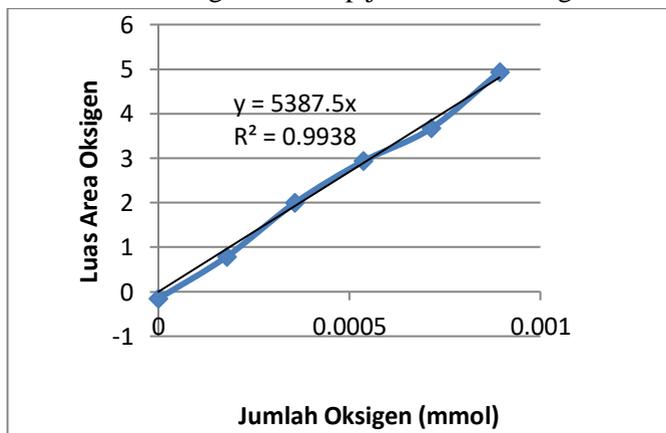
$$= 5,807 \text{ g}$$

- $\text{Co}_3\text{O}_4$   
 Mol  $\text{Co}_3\text{O}_4$  =  $0,27 \times 0,131$  mol  
 = 0,035 mol  
 Massa  $\text{Co}_3\text{O}_4$  = mol  $\text{Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr } \text{Co}_3\text{O}_4$   
 =  $0,035 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol}$   
 = 8,422 g
- $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Mol  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  =  $0,1 \times 0,131$  mol  
 = 0,0131 mol  
 Massa  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  = mol  $\text{Fe}_2\text{O}_3 \times \text{Mr } \text{Fe}_2\text{O}_3$   
 =  $0,0131 \text{ mol} \times 159,6 \text{ g/mol}$   
 = 2,094 g

## 2. Perhitungan Fluks Permeasi Oksigen

### a. Kurva kalibrasi oksigen

Kurva luas area oksigen terhadap jumlah mol oksigen



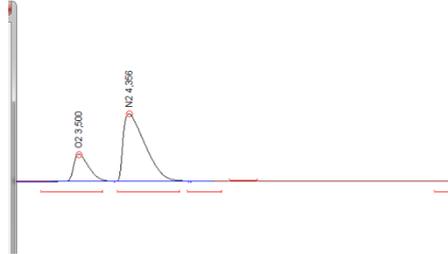
Persamaan kalibrasi Oksigen :

$$y = 5387 x$$

dengan  $y$  = luas area oksigen

$x$  = Jumlah oksigen (mmol)

b. Perhitungan faktor koreksi nitrogen  
Kromatogram GC Udara

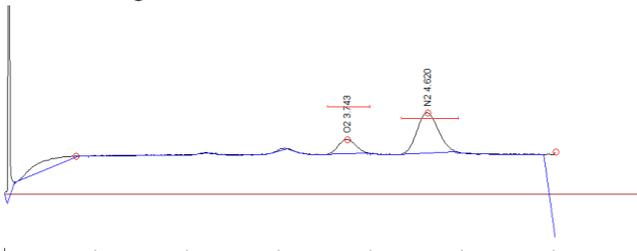


- Luas area nitrogen = 172,4378
- Luas area oksigen = 46,2408
- $\frac{\text{Oksigen}}{\text{Nitrogen}} = \frac{\text{Luas area O}_2}{\text{Luas area N}_2} = \frac{46,2408}{172,4378} = \frac{1}{3,7291}$

c. Perhitungan fluks oksigen membran datar BSCF 5582

➤ Data fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada variasi suhu (Percobaan 1)

- Suhu = 600°C
- Laju alir *compressed air* = 150 mL.menit<sup>-1</sup>
- Laju alir helium = 30 mL.menit<sup>-1</sup>
- Volume loop sampel GC = 0,2 mL
- Luas permukaan efektif membran = 0,4420 cm<sup>2</sup>
- Kromatogram GC



$$\begin{aligned}
 \text{Luas area nitrogen} &= 5,5742 \\
 \text{Luas area oksigen} &= 1,6045 \\
 \text{Luas area oksigen dari udara} &= \text{luas area } N_2 \times \frac{O_2}{N_2} \\
 &= 5,5742 \times \frac{1}{3,7291} \\
 &= 1,4948 \\
 \text{Luas area oksigen dari membran} &= \text{luas area } O_2 \text{ di kromatogram} \\
 &\quad - \text{luas area } O_2 \text{ di udara} \\
 &= 1,6045 - 1,4948 \\
 &= 0,1097 \\
 \text{Persamaan kalibrasi } y &= 5387 x \\
 \text{Jumlah } O_2(x) &= \frac{\text{luas area oksigen } (y)}{5387} \\
 &= \frac{0,1097}{5387} \\
 &= 0,00002 \text{ mmol} \\
 \text{Konsentrasi Oksigen} &= \text{Jumlah } O_2 / V \text{ loop sampel GC} \\
 &= 0,00002 \text{ mmol} / 0,2 \text{ mL} \\
 &= 0,00010 \text{ mmol} \cdot \text{mL}^{-1} \\
 \text{Fluks oksigen} &= (\text{konsentrasi oksigen} \times \text{laju alir helium}) / \text{luas} \\
 &\quad \text{permukaan efektif membran} \\
 &= (0,00010 \text{ mmol/mL} \times 30 \text{ mL/menit}) / 0,4420 \text{ cm}^2 \\
 &= 0,00691 \text{ mmol/menit} \cdot \text{cm}^2 \\
 &= 1,15 \times 10^{-7} \text{ mol/detik} \cdot \text{cm}^2
 \end{aligned}$$

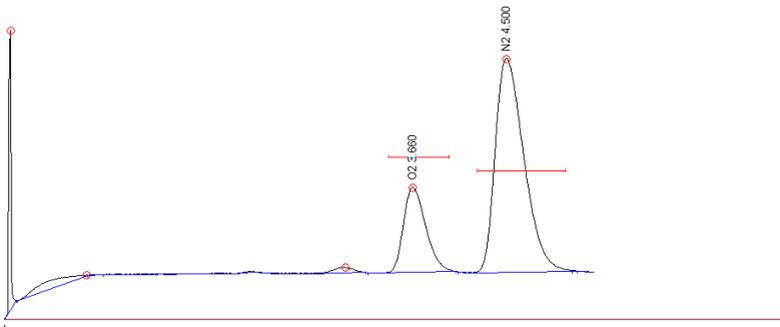
Hasil perhitungan fluks oksigen membran datar BSCF 5582 selengkapnya disajikan di Tabel 1.

**Tabel 1** Data perhitungan nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada variasi suhu reaksi

Suhu (°C)	Luas Area				Jumlah oksigen (mmol)	Konsentrasi Oksigen (mmol.ml-1)	Fluks (mmol.menit-1.cm-2)	Fluks (mol.detik-1.cm-2)	Nilai fluks rata-rata (mol.detik-1.cm-2)
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> Udara	O <sub>2</sub> Membran					
600	5,5742	1,6045	1,4948	0,1097	0,00002	0,00010	0,00691	1,15E-07	1,78E-07
600	5,3902	1,7416	1,4454	0,2962	0,00005	0,00027	0,01866	3,11E-07	
600	5,7812	1,7675	1,5503	0,2172	0,00004	0,00020	0,01369	2,28E-07	
600	5,9638	1,6555	1,5992	0,0563	0,00001	0,00005	0,00354	5,91E-08	
700	6,8983	2,0962	1,8498	0,2464	0,00005	0,00023	0,01552	2,59E-07	3,48E-07
700	7,2066	2,3522	1,9325	0,4197	0,00008	0,00039	0,02644	4,41E-07	
700	7,3876	2,221	1,9811	0,2399	0,00004	0,00022	0,01512	2,52E-07	
700	7,1818	2,3469	1,9259	0,4210	0,00008	0,00039	0,02653	4,42E-07	
800	18,4566	6,125	4,9493	1,1757	0,00022	0,00109	0,07417	1,24E-06	1,17E-06
800	18,6584	6,2035	5,0034	1,2001	0,00022	0,00111	0,07561	1,26E-06	
800	19,4247	6,298	5,2089	1,0891	0,00020	0,00101	0,06862	1,14E-06	
800	19,8162	6,322	5,3139	1,0081	0,00019	0,00094	0,06351	1,06E-06	

➤ Data fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada variasi laju alir helium (Percobaan 1)

- Suhu = 800°C
- Laju alir *compressed air* = 150 mL.menit<sup>-1</sup>
- Laju alir helium = 20 mL.menit<sup>-1</sup>
- Volume loop sampel GC = 0,2 mL
- Luas permukaan efektif membran = 0,4420 cm<sup>2</sup>
- Kromatogram GC



$$\text{Luas area nitrogen} = 33,8512$$

$$\text{Luas area oksigen} = 10,4916$$

$$\begin{aligned} \text{Luas area oksigen dari udara} &= \text{luas area } N_2 \times \frac{O_2}{N_2} \\ &= 33,8512 \times \frac{1}{3,7291} \\ &= 9,0775 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Luas area oksigen dari membran} &= \text{luas area } O_2 \text{ di kromatogram} \\ &\quad - \text{luas area } O_2 \text{ di udara} \\ &= 10,4916 - 9,0775 \\ &= 1,4141 \end{aligned}$$

$$\text{Persamaan kalibrasi } y = 5387 \times$$

$$\begin{aligned} \text{Jumlah Oksigen}(x) &= \frac{\text{luas area oksigen } (y)}{5387} \\ &= \frac{1,4141}{5387} \\ &= 0,00026 \text{ mmol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Konsentrasi Oksigen} &= \text{Jumlah oksigen} / V \text{ loop sampel GC} \\ &= 0,00026 \text{ mmol} / 0,2 \text{ mL} \\ &= 0,4562 \text{ mmol.menit}^{-1}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Fluks oksigen} &= (\text{konsentrasi oksigen} \times \text{Laju alir helium}) / \text{luas permukaan efektif membran} \\ &= (0,4562 \text{ mmol/mL} \times 20 \text{ mL/menit}) / 0,4420 \text{ cm}^2 \\ &= 20,6429 \text{ mmol/menit.cm}^2 \\ &= 2,06 \times 10^{-2} \text{ mol/menit.cm}^2 \\ &= 3,44 \times 10^{-4} \text{ mol/detik.cm}^2\end{aligned}$$

Hasil perhitungan fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada variasi laju alir helium selengkapnya disajikan di Tabel 2.

**Tabel 2** Data perhitungan nilai fluks oksigen membran datar BSCF 5582 pada variasi laju alir helium

Laju alir He (ml.min <sup>-1</sup> )	Luas Area				Jumlah oksigen (mmol)	Konsentrasi Oksigen (mmol.ml <sup>-1</sup> )	Fluks (mmol.menit-1.cm-2)	Fluks (mol.detik-1.cm-2)	Nilai fluks rata-rata (mol.detik-1.cm-2)
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> Udara	O <sub>2</sub> Membran					
20	33,8512	10,4916	9,0775	1,4141	0,00026	0,00131	0,05939	9,90E-07	9,96E-07
20	33,7028	10,6816	9,0377	1,6439	0,00031	0,00153	0,06905	1,15E-06	
20	33,9632	10,5096	9,1075	1,4021	0,00026	0,00130	0,05889	9,81E-07	
20	34,2262	10,4106	9,1781	1,2325	0,00023	0,00114	0,05177	8,63E-07	
30	18,4566	6,125	4,9493	1,1757	0,00022	0,00109	0,07417	1,24E-06	1,17E-06
30	18,6584	6,2035	5,0034	1,2001	0,00022	0,00111	0,07561	1,26E-06	
30	19,4247	6,298	5,2089	1,0891	0,00020	0,00101	0,06862	1,14E-06	
30	19,8162	6,322	5,3139	1,0081	0,00019	0,00094	0,06351	1,06E-06	
40	14,5774	4,734	3,9091	0,8249	0,00015	0,00077	0,06930	1,15E-06	1,21E-06
40	14,7736	4,8926	3,9617	0,9309	0,00017	0,00086	0,07820	1,30E-06	
40	14,8388	4,7292	3,9792	0,7500	0,00014	0,00070	0,06301	1,05E-06	
40	14,9128	4,938	3,9990	0,9390	0,00017	0,00087	0,07888	1,31E-06	

d. Perhitungan fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582

Hasil perhitungan fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada variasi suhu reaksi disajikan pada Tabel 3, sementara perhitungan fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada variasi laju alir helium disajikan pada Tabel 4.

**Tabel 3** Data perhitungan nilai fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$  5582 pada variasi suhu reaksi

Suhu (°C)	Luas Area				Jumlah oksigen (mmol)	Konsentrasi Oksigen (mmol.ml-1)	Fluks (mmol.menit- 1.cm-2)	Fluks (mol.detik- 1.cm-2)	Nilai fluks rata-rata (mol.detik -1.cm-2)
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> Udara	O <sub>2</sub> Membran					
600	3,8308	1,246	1,0273	0,2187	0,00004	0,00020	0,01378	2,30E-07	2,12E-07
600	3,9322	1,2116	1,0545	0,1571	0,00003	0,00015	0,00990	1,65E-07	
600	4,0467	1,3166	1,0852	0,2314	0,00004	0,00021	0,01458	2,43E-07	
600	4,2296	1,3339	1,1342	0,1997	0,00004	0,00019	0,01258	2,10E-07	
700	7,4354	2,5876	1,9939	0,5937	0,00011	0,00055	0,03741	6,23E-07	4,91E-07
700	8,9489	2,8852	2,3997	0,4855	0,00009	0,00045	0,03059	5,10E-07	
700	9,5983	3,0007	2,5739	0,4268	0,00008	0,00040	0,02689	4,48E-07	
700	9,9977	3,0472	2,6810	0,3662	0,00007	0,00034	0,02307	3,85E-07	
800	15,9764	5,8136	4,2842	1,5294	0,00028	0,00142	0,09635	1,61E-06	1,36E-06
800	13,7057	5,0117	3,6753	1,3364	0,00025	0,00124	0,08420	1,40E-06	
800	14,7276	5,1348	3,9493	1,1855	0,00022	0,00110	0,07469	1,24E-06	
800	15,701	5,3376	4,2104	1,1272	0,00021	0,00105	0,07102	1,18E-06	

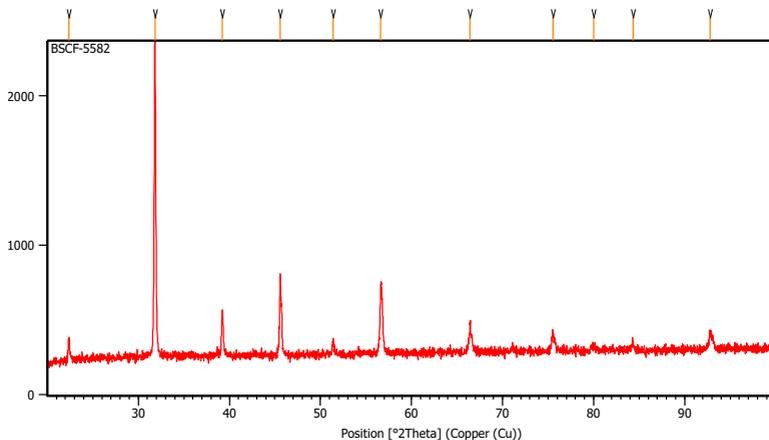
**Tabel 4** Data perhitungan nilai fluks oksigen membran datar  $\text{Co}_3\text{O}_4$ / BSCF 5582 pada variasi laju alir helium

Laju alir He (ml, min <sup>-1</sup> )	Luas Area				Jumlah oksigen (mmol)	Konsentras i Oksigen (mmol.ml-1)	Fluks (mmol.menit-1.cm-2)	Fluks (mol.detik-1.cm-2)	Nilai fluks rata-rata (mol.detik-1.cm-2)
	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> Udara	O <sub>2</sub> Membran					
20	32,5967	10,6368	8,7411	1,8957	0,00035	0,00176	0,07962	1,33E-06	1,20E-06
20	29,6978	9,6458	7,9637	1,6821	0,00031	0,00156	0,07065	1,18E-06	
20	29,9439	9,7408	8,0297	1,7111	0,00032	0,00159	0,07187	1,20E-06	
20	30,0806	9,6411	8,0664	1,5747	0,00029	0,00146	0,06614	1,10E-06	
30	15,9764	5,8136	4,2842	1,5294	0,00028	0,00142	0,09635	1,61E-06	1,36E-06
30	13,7057	5,0117	3,6753	1,3364	0,00025	0,00124	0,08420	1,40E-06	
30	14,7276	5,1348	3,9493	1,1855	0,00022	0,00110	0,07469	1,24E-06	
30	15,701	5,3376	4,2104	1,1272	0,00021	0,00105	0,07102	1,18E-06	
40	13,5426	4,7204	3,6316	1,0888	0,00020	0,00101	0,09146	1,52E-06	1,41E-06
40	12,0274	4,2031	3,2253	0,9778	0,00018	0,00091	0,08214	1,37E-06	
40	15,4318	5,2077	4,1382	1,0695	0,00020	0,00099	0,08984	1,50E-06	
40	12,6258	4,2873	3,3857	0,9016	0,00017	0,00084	0,07574	1,26E-06	

## LAMPIRAN C

### Difraktogram Sinar X

#### 1. BSCF 5582



#### Peak List:

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
22.3788	145.10	0.1338	3.97283	6.86
31.8209	2113.71	0.1506	2.81226	100.00
39.2221	308.51	0.0669	2.29696	14.60
45.5899	533.21	0.1171	1.98985	25.23
51.3802	80.44	0.1673	1.77839	3.81
56.6078	400.67	0.1338	1.62594	18.96
66.4380	183.11	0.1004	1.40723	8.66
75.5244	139.44	0.1338	1.25891	6.60
80.0013	26.88	0.4684	1.19935	1.27
84.3038	52.03	0.2007	1.14877	2.46
92.7944	109.65	0.2007	1.06463	5.19

## Hasil SEM-EDX

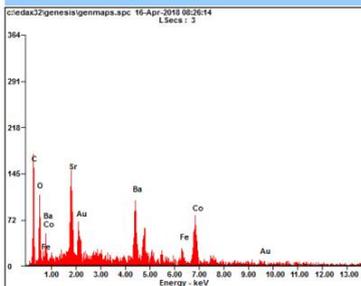
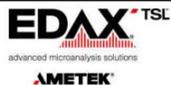
### 2. Penampang lintang datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 dengan metode *pre-sintering*

#### Microanalysis Report

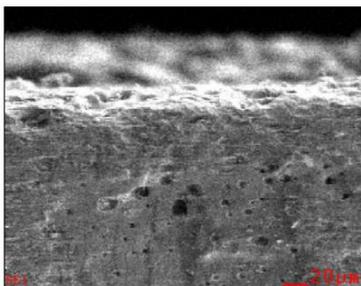
Prepared for: *Company Name Here*

Prepared by: *Your Name Here*

4/16/2018



Element	Wt%	At%
CK	18.38	50.90
OK	11.48	23.86
SrL	14.87	05.64
BaL	25.13	06.09
FeK	04.11	02.45
CoK	16.85	09.51
AuL	09.18	01.55
Matrix	Correction	ZAF



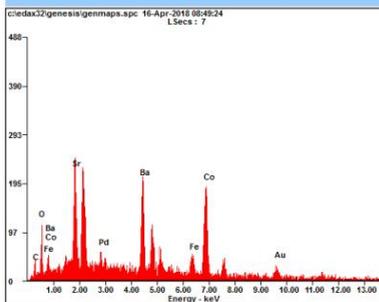
### 3. Penampang lintang datar $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BSCF}$ 5582 dengan metode *post-sintering*

#### Microanalysis Report

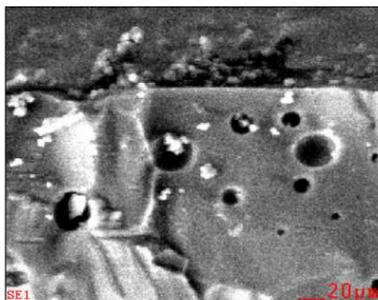
Prepared for: *Company Name Here*

Prepared by: *Your Name Here*

4/16/2018



Element	Wt%	At%
CK	02.09	12.08
OK	04.97	21.54
SrL	12.96	10.26
PdL	03.39	02.21
BaL	28.48	14.38
FeK	04.31	05.36
CoK	22.72	26.74
AuL	21.08	07.43
Matrix	Correction	ZAF



*“Halaman ini sengaja dikosongkan”*

## BIODATA PENULIS



Aras Suci Wijayanti atau yang biasa disapa Aras adalah putri dari pasangan Bapak Surono dan Ibu Sumiati. Anak ketiga dari tiga bersaudara ini lahir di Madiun pada tanggal 18 Mei 1996. Saat ini penulis sedang menempuh pendidikan sarjana (S1) di Departemen Kimia Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS) Surabaya dan terdaftar dengan NRP 01211440000053. Sebelum tercatat sebagai mahasiswi Departemen Kimia ITS penulis telah mengenyam pendidikan formal di SD Negeri Klecorejo 02, SMP Negeri 01

Mejayan dan SMA Negeri 01 Mejayan. Pada semester akhir perkuliahan, penulis mengambil Tugas Akhir di bidang minat Kimia Material dan Energi dibawah bimbingan Hamzah Fansuri M.Si, Ph.D. dan Wahyu Prasetyo Utomo M.Si. Penulis pernah melakukan kerja praktik di Research and Technology Center (RTC) PT. Pertamina dalam bidang material dan katalis. Selain aktif menjadi mahasiswi, penulis juga aktif dalam beberapa unit kegiatan kampus. Penulis aktif menjadi anggota Unit Kegiatan Mahasiswa (UKM) Maritime Challenge yang menggeluti bidang pemuda dan kelautan, selain menjadi anggota penulis juga pernah menjadi Sekretaris I UKM Maritime Challenge dan pernah pula menyumbangkan prestasi berupa Juara 1 Lomba Dayung Putri tingkat Nasional pada event Marine Icon 2015. Penulis pun juga pernah aktif sebagai pengurus BEM Fakultas MIPA ITS. Penulis dapat dikontak melalui nomor 085852087424 atau di email [warassuci@gmail.com](mailto:warassuci@gmail.com).