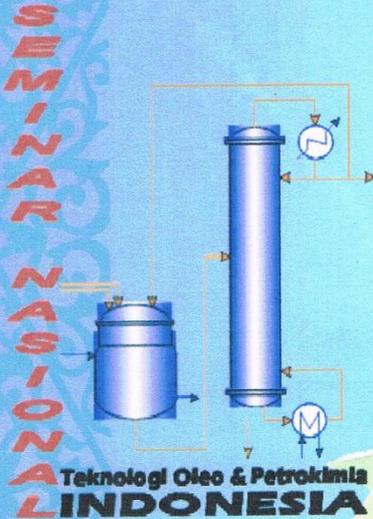


# Prosiding Seminar Nasional Teknik Kimia Teknologi Oleo dan Petrokimia Indonesia

# 2013



Pekanbaru, 27 November 2013

**JURUSAN TEKNIK KIMIA  
FAKULTAS TEKNIK  
UNIVERSITAS RIAU**

Presented by:



---

	(Vera Surtia B., Vivien Alfirna)	
LL-03	Pemodelan Dinamik dan Simulasi Siklus Nitrogen pada Kolam Pembesaran Lele (Kesni Savitri, Zulfansyah, Jecky Asmura, Hari Rionaldo)	330
LL-04	Prediksi Emisi Karbondioksida Dari Sektor Transportasi Perkotaan Menggunakan Model Gaussian (Aryo Sasmita, Rachmad B., Joni Hermana)	343
LL-05	Fotokatalitik Evolusi Hidrogen dari Air pada Fotokatalis Pt/La-C-NaTO <sub>3</sub> Menggunakan Irradiasi Cahaya Tampak (Husni Husin, Mahidin, Fikri Hasfita, Doni Andrian, Syeh Syairazi)	352
LL-06	Status dan Potensi Pengembangan 3R dalam Peningkatan Pengelolaan Persampahan Perkotaan: Studi Kasus Kota Padang (Slamet Raharjo, Taufiq Ihsan, Luciana Gustin)	359
LL-07	Simulasi Fotobioreaktor Kolom Gelembung untuk Kultivasi Alga (Yuswan M., Dianursanti, M. Istiqamah Z.)	369
LL-08	Sintesa dan Karakterisasi Katalis Nickel-Natural Zeolite Dealuminated (Syaiful Bahri, Erlis Marita)	379
LL-09	Komparasi Katup Ekspansi Termostatik dan Pipa Kapiler terhadap Temperatur dan Tekanan Mesin Pendingin (Azridjal Aziz)	389
LL-10	Pengaruh Pengganggu Pada Proses Disinfeksi Terhadap Penyisihan Bakteri <i>Escherichia coli</i> pada Air Pengolahan PDAM Gunung Pangilun (Puti Sri Komala, Feni Agustin)	398
LL-11	Proses Pencairan Langsung Tandan Kosong Sawit Menjadi Bahan Bakar Cair Dengan Katalis Hzsm-5 dan Nimo/Zsm-5 (Fajril Akbar, Silvia Reni Yenti)	406

## Fotokatalitik Evolusi Hidrogen dari Air pada Fotokatalis Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub> Menggunakan Irradiasi Cahaya Tampak

Husni Husin\*, Mahidin, Fikri Hasfita, Doni Andrian  
dan Syeh Syairazi

Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Syiah Kuala  
Gedung Teknik Kimia, Jalan Tgk. Abdurrauh No.7, Darussalam Banda Aceh,  
Indonesia, 23111

\*Email: [husni\\_husin2002@yahoo.com](mailto:husni_husin2002@yahoo.com)

### Abstrak

Fabrikasi fotokatalis semikonduktor lantanum-carbon-co-doped NaTaO<sub>3</sub> yang di loading dengan ko-katalis platinum (Pt) telah dilakukan. Tujuan penelitian ini adalah untuk mengevaluasi pengaruh loading ko-katalis Pt pada lantanum-carbon-co-doped NaTaO<sub>3</sub> terhadap laju produksi hidrogen dari air. Ko-katalis Pt di loading dengan metode fotodeposisi. Sampel fotokatalis hasil sintesis dikarakterisasi dengan *x-ray diffractometer* (XRD), *scanning electron microscopy* (SEM), dan *UV-vis diffuse reflectance spectra*. Hasil analisis dengan XRD menunjukkan bahwa serbuk fotokatalis memiliki kristalinitas yang tinggi. Hasil perbandingan spektrum XRD sampel dengan XRD NaTaO<sub>3</sub> standar mengindikasikan bahwa bentuk struktur katalis dominan *monoclinic*. Dari rekaman gambar SEM menampilkan ukuran partikel sampel berkisar antara 50-300 nm. Partikel Pt tidak terdeteksi dari gambar SEM maupun XRD karena jumlahnya sangat sedikit, yaitu 0,3% berat dari fotokatalis. Uji *UV-vis diffuse reflectance spectra* menunjukkan bahwa fotokatalis respon terhadap cahaya *visible*. Uji kinerja sampel fotokatalis dievaluasi terhadap reaksi evolusi hidrogen dari air menggunakan metanol sebagai *sacrificial reagent*. Reaksi dilangsungkan dalam reaktor tertutup dengan sistem sirkulasi gas. Laju evolusi hidrogen meningkat secara luar biasa mencapai 262,4  $\mu\text{mol}\cdot\text{h}^{-1}$  atau sekitar 6,5 kali lebih tinggi setelah dideposisi Pt sebagai ko-katalis pada permukaan fotokatalis lantanum-carbon-co-doped NaTaO<sub>3</sub>. Produksi hidrogen dari air secara fotokatalitik merupakan proses menjanjikan, bersih (*green energy*) dan ramah lingkungan, dapat menjadi kandidat energi masa depan.

**Kata kunci:** Platinum, Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub>, kokatalis, fotodeposisi, hidrogen

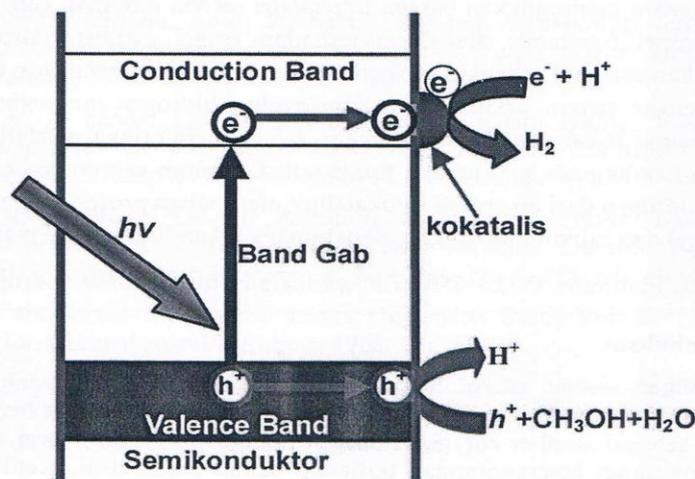
### 1. Pendahuluan

Pengembangan sistem energi berbasis H<sub>2</sub> yang bersih sudah sangat mendesak. Produksi hidrogen telah menjadi banyak perhatian, karena sangat berpotensi untuk diaplikasi sebagai sumber energi. Hidrogen dianggap sebagai energi alternatif yang dapat mengurangi ketergantungan terhadap bahan bakar fosil. Ketika H<sub>2</sub> menjadi pembawa energi primer maka hidrokarbon akan digantikan oleh hidrogen (Antoniadou and Lianos, 2009). Dewasa ini sekitar 95% produksi H<sub>2</sub> berasal dari *steam reforming gas alam*, yang memiliki ketergantungan langsung pada bahan bakar

fosil (Zong et al., 2010).

Produksi hidrogen via photo-splitting air menjadi proses ramah lingkungan telah dianggap sebagai alternatif terbaik. Saat ini, banyak kelompok riset melakukan produksi  $H_2$  melalui pemisahan air menggunakan energi surya. Konversi energi surya masih merupakan masalah yang menantang dan berbagai penelitian telah dilakukan ke arah ini. Penemuan hidrogen secara fotokatalitik dekomposisi air pada elektroda  $TiO_2$  pertama sekali dilaporkan oleh Fujishima dan Honda yang sekaligus menciptakan paradigma baru dalam konversi energi dan rehabilitasi lingkungan menggunakan foton matahari (Fujishima and Honda, 1972).

Fotokatalitik *water splitting* menjadi  $H_2$  dan  $O_2$  akan menjadi salah satu teknologi produksi  $H_2$  secara atraktif. Dekomposisi air melalui proses fotokatalitik menggunakan oksida semikonduktor dan energi surya sangat menjanjikan dan menjadi sebuah teknologi energi bersih dan diperkirakan dapat menyelesaikan masalah kelangkaan energi dan pencemaran lingkungan (Stratiki et al., 2007) (Husin, 2013). Banyak fotokatalis oksida logam yang memiliki aktivitas baik telah dilaporkan untuk reaksi water splitting di bawah sinar UV dan sinar tampak. Sebagai contoh oksida logam seperti  $TiO_2$  (Sreethawong et al., 2005),  $ZnO/ZnS$  (Sang et al., 2012),  $SrTiO_3$  (Qin et al., 2007),  $N-NaTaO_3$  (Liu et al., 2011), dan  $SrTiO_2$ , memiliki aktivitas yang wajar untuk dekomposisi air menjadi  $H_2$  dan  $O_2$  dalam rasio stoikiometri di bawah iradiasi sinar ultraviolet (UV) dan iradiasi cahaya tampak. Prinsip di balik fotokatalitik air dengan menggunakan semikonduktor oksida logam adalah bahwa ketika katalis kontak dengan air maka elektron hasil eksitasi pada *conduction band* (potensial reduksi) akan mereduksi air menjadi hidrogen jika posisi *conduction band* lebih negatif dibandingkan potensial reduksi  $H^+/H_2$ . Diagram alir prinsip kerja dari reaksi water splitting pada semikonduktor disajikan pada Gambar 1.



Gambar 1. Prinsip kerja fotokatalitik *water-splitting* menjadi hidrogen

Masalah utama dalam reaksi fotokatalitik adalah cepatnya rekombinasi antara *electron* dan *hole*. Oleh karena itu, proses rekombinasi elektron-hole perlu dicegah. Salah satu cara untuk mengontrol proses ini adalah dengan menambahkan ko-katalis pada permukaan semikonduktor. Seperti diketahui, kokatalis pada permukaan fotokatalis semikonduktor sering diperlukan untuk mencapai evolusi hidrogen lebih efisien. Kokatalis dapat menurunkan energi aktivasi dalam proses produksi hidrogen, sebagai penangkap elektron agar menghindari rekombinasi antara *electron* ( $e^-$ ) dan *hole* ( $h^+$ ), serta bertindak sebagai situs reaksi reduksi dengan  $H^+$  (Chen et al., 2010). Penelitian ini melaporkan pengaruh kokatalis platinum (Pt) dalam larutan terhadap aktivitas fotokatalitik produksi hidrogen dari air.

## 2. Metodologi

### 2.1. Sintesis fotokatalis semikonduktor

Semua bahan kimia yang digunakan tanpa dilakukan pemurnian lebih lanjut. La-C-doped  $NaTaO_3$  fotokatalis disintesis dengan metode sol-gel. Pada prinsipnya, senyawa  $TaCl_5$  dan  $NaOH$  ditimbang menurut keperluan yang diinginkan. Selanjutnya  $TaCl_5$  dilarutkan dalam etanol 98,9%, dan  $NaOH$  dilarutkan dalam air. Garam  $La(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$  dan sukrosa ( $C_{12}H_{22}O_{11}$ ) keduanya secara terpisah dilarutkan dalam air (jumlah mol C adalah 2.5% mol dari total  $TaCl_5$ ). Kemudian larutan La dan C ditambahkan ke dalam larutan (Ta dan  $NaOH$ ) sambil di aduk terus menerus untuk membentuk larutan sol. Selanjutnya ke dalam larutan tersebut ditambahkan larutan asam sitrat secara perlahan melalui buret. Jika larutan asam sitrat sudah habis, selanjutnya pH diatur menurut keinginan menggunakan larutan ammonia atau basa lainnya. Proses pembentukan gel dilakukan dengan cara pemanasan pada suhu  $80\text{ }^\circ\text{C}$  sampai gel dihasilkan. Selanjutnya powder dikeringkan pada suhu  $120\text{ }^\circ\text{C}$  untuk membuat gel menjadi kering. Serbuk dihaluskan, kemudian dikalsinasi pada suhu  $800\text{ }^\circ\text{C}$  hingga menjadi kristal.

Pemuatan Pt sebagai kokatalis bertujuan untuk mempromosi hidrogen. Pt disiapkan dengan metode fotodeposisi *in situ* pada semikonduktor La-C- $NaTaO_3$ . Senyawa  $H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$  sebagai prekursor Pt dilarutkan ke dalam etanol. Misalnya, sebanyak 0,2% Pt dari berat katalis di tetes demi tetes ke larutan dalam reaktor sebelum reaksi fotokatalitik dilaksanakan.

### 2.2. Karakterisasi

Pola difraksi sinar-x (XRD) dari serbuk fotokatalis ditentukan dengan XRD-7000 difraktometer menggunakan  $Cu\ K\alpha$  pada irradiasi ( $\lambda = 1.5418\text{ \AA}$ ). Morfologi kristal sampel dianalisis dengan alat *scanning electron microscopy* (SEM) Philips XL-30. Untuk mengetahui energi *band gap* semikonduktor, sampel dianalisis dengan UV-vis *reflectant spectra*.

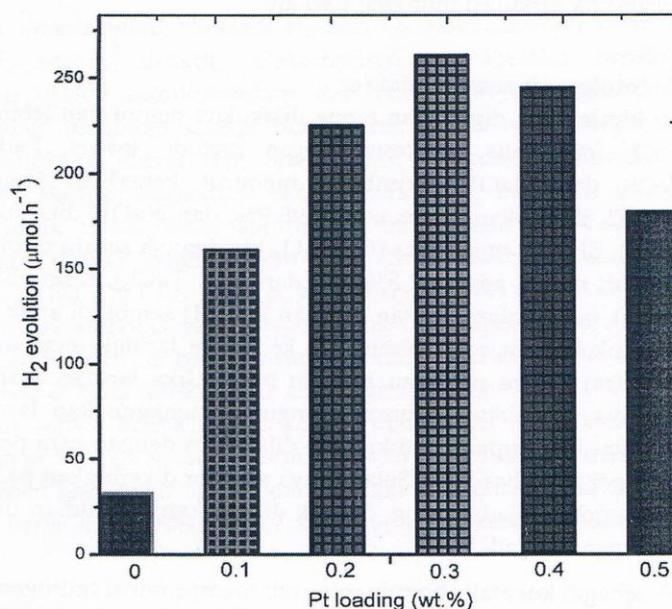
### 2.3. Reaksi dekomposisi air menjadi hidrogen

Reaksi fotokatalitik dekomposisi air menjadi hidrogen dilakukan dalam reaktor transparan menggunakan lampu halida 150 W sebagai sumber irradiasi. Selanjutnya 0,3 g fotokatalis ditambahkan ke dalam 400 mL larutan metanol-air yang mengandung 10% metanol. Sebelum reaksi dijalankan terlebih dahulu dialirkan gas Ar untuk mengusir gas  $O_2$  jika terdapat dalam reaktor. Jumlah  $H_2$  yang berevolusi

dialirkan ke penyimpanan gas dan selanjutnya dianalisis dengan Gas Chromatograph (GC).

### 3. Hasil dan Pembahasan

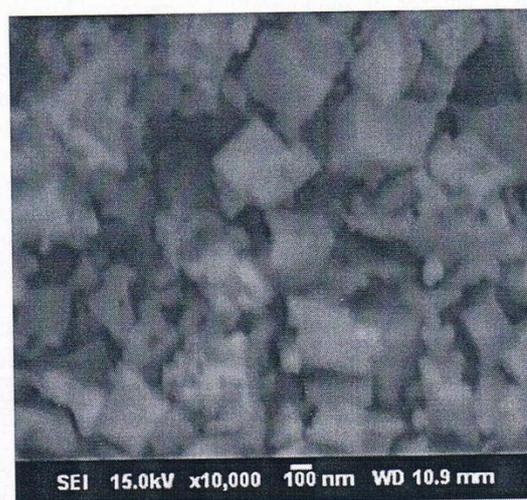
Uji kinerja fotokatalis semikonduktor Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub> dilakukan dalam reaktor gelas untuk mengetahui pengaruh *loading* Pt terhadap laju evolusi hidrogen. Larutan metanol-air sebanyak 400 ml dimasukkan ke dalam reaktor. Pt ( 0,2% berat dari La-C-NaTaO<sub>3</sub>) dicampur dengan larutan metanol-air dalam reaktor. Hubungan antara *loading* kokatalis Pt terhadap evolusi hidrogen disajikan pada Gambar 2.



Gambar 2. Hubungan *loading* Pt terhadap laju produksi hidrogen

Dari Gambar 2 terlihat bahwa laju produksi hidrogen pada sampel tanpa ko-katalis mencapai 40,2 (µmol.h<sup>-1</sup>). Laju produksi hidrogen meningkat secara dramatik ketika ditambahkan kokatalis Pt ke dalam larutan reaksi, yaitu mencapai 6,5 kali lebih tinggi dari sampel tanpa kokatalis. Laju evolusi hidrogen tertinggi diperoleh pada Pt 0,3% berat. Fakta ini mengindikasikan bahwa muatan Pt sangat berkontribusi dalam menghindari terjadinya rekombinasi antara elektron dan *hole*. Pt bertindak menangkap elektron pada *conduction band*, selanjutnya bereaksi dengan ion H<sup>+</sup> menghasilkan H<sub>2</sub>. Disisi lain, adanya metanol 10% dalam larutan sangat berperan dalam menangkap *hole* pada *valence band*, selanjutnya bereaksi dengan air menghasilkan ion H<sup>+</sup>. Gabungan antara Pt dan metanol memiliki kontribusi yang sinergi terhadap efisiensi pemisahan *electron* dan *hole*, dengan demikian reaksi pembentukan hidrogen juga semakin efisien. Akan tetapi, peningkatan konsentrasi Pt lebih besar dari 0,3% terlihat menurunkan laju evolusi hidrogen. Fakta ini kemungkinan disebabkan karena terjadi aglomerasi Pt pada permukaan

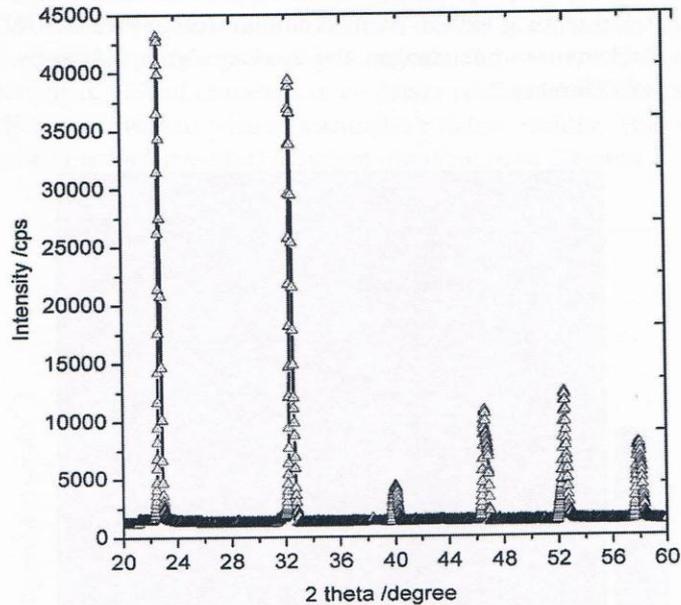
semikonduktor. Selain itu, ketika Pt terdeposisi lebih tinggi pada permukaan partikel, hal ini dapat menurunkan kapasitas penyerapan cahaya oleh semikonduktor, dengan demikian *electron* dan *hole* yang diserap berkurang (Strataki et al., 2010). Untuk mengetahui tentang ukuran partikel dan morfologi Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub>, berikut disajikan hasil rekaman sampel dengan alat *scanning electron microscopy (SEM)*, seperti ditampilkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Hasil rekaman SEM dari semikonduktor Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub>

Bentuk partikel fotokatalis La-C-NaTaO<sub>3</sub> pada umumnya *monoclinic*. Permukaan partikel sampel tampak jelas bersih dan mulus mengindikasikan material hasil sintesis memiliki derajat kristal yang tinggi. Tingginya derajat kristalinitas material sangat berkontribusi terhadap efisiensi pemisahan *photogenerated electron* dan *hole* dan peningkatan aktivitas produksi hidrogen. Dari permukaan fotokatalis tidak terlihat adanya partikel Pt karena jumlah Pt yang dimuat sangat kecil. Ukuran partikel semikonduktor berkisar antara 50-300 nm. Ukuran ini lebih kecil dari partikel yang dilaporkan oleh (Porob and Maggard, 2006) yang juga mensintesis La-NaTaO<sub>3</sub> dengan metoda flux (dengan ukuran partikel 500 nm). Selain itu La-NaTaO<sub>3</sub> yang dihasilkan bentuknya tidak beraturan dan terjadi aglomerasi (Porob and Maggard, 2006).

Gambar 4 menyajikan spektrum *x-ray diffractometer (XRD)* semikonduktor Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub>. Spektrum XRD sampel dibaca setelah membandingkan dengan pola XRD NaTaO<sub>3</sub> standar. Dari Gambar 4 mengilustrasikan bahwa pola XRD sampel sama dengan pola XRD NaTaO<sub>3</sub> standar dengan nomor katalog 74-2478. Dari pola XRD sampel terindikasi bahwa powder hanya terdiri dari fasa tunggal NaTaO<sub>3</sub>. Sama halnya dengan hasil rekaman SEM, tidak terindikasi adanya pola puncak karakteristik lantanum (La), Carbon (C), maupun Platinum (Pt) pada difraktogram, karena jumlah doping dan kokatalis Pt yang dimuat sangat sedikit.



Gambar 4. Hasil analisis spektrum XRD semikonduktor Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub>

Energi *band gab* semikonduktor ditentukan dari hasil analisa powder dengan Uv-vis. Nilai absorbansi spektrum *Uv-vis reflectant spectra* Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub> hasil pengukuran berada pada panjang gelombang ( $\lambda_g$ ) lebih besar dari 400 nm (Gambar tidak ditampilkan dalam tulisan ini), hasil ini lebih tinggi dari NaTaO<sub>3</sub> tanpa doping. Energi *band gab* ( $E_g$ ) sampel dapat dihitung menggunakan Pesamaan 1.

$$E_g (eV) = 1240/\lambda_g (nm) \quad (1)$$

Di mana:  $\lambda_g$  sampel = 447,8 eV, diperoleh dengan menarik garis singgung kurva memotong panjang gelombang. Nilai energi *band gab*  $E_g$  hasil perhitungan diperoleh 2,77 eV. Nilai ini menunjukkan bahwa material semikonduktor ini sensitif terhadap cahaya tampak.

#### 4. Kesimpulan

Dari uraian di atas dapat diambil beberapa kesimpulan:

1. Dekomposisi Pt pada La-C-NaTaO<sub>3</sub> telah berhasil dengan sukses.
2. Laju evolusi hidrogen pada Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub> mencapai 262,4  $\mu\text{mol}\cdot\text{h}^{-1}$  atau sekitar 6,5 kali lebih tinggi dari semikonduktor tanpa kokatalis Pt.
3. Kokatalis Pt telah berkontribusi sebagai penangkap elektron sehingga efisiensi pemisahan air menjadi hidrogen lebih efisien.
4. Semikonduktor Pt/La-C-NaTaO<sub>3</sub> dapat dijadikan sebagai fotokatalis produksi hidrogen bersih dari air.

**Ucapan Terima Kasih**

Penulis mengucapkan terima kasih atas bantuan dana dari Grant-Insentif Riset SINas melalui menteri Riset dan Teknologi Republik Indonesia tahun 2013 dan semua pihak yang telah membantu.

**Daftar Pustaka**

- Antoniadou, M. and Lianos, P. (2009). "Near Ultraviolet and Visible light photoelectrochemical degradation of organic substances producing electricity and hydrogen." *J. Photochem. Photobiol. A* 204: 69-74.
- Zong, X., Wu, G., Yan, H., Ma, G., Shi, J., Wen, F., Wang, L. and Li, C. (2010). "Photocatalytic H<sub>2</sub> Evolution on MoS<sub>2</sub>/CdS Catalysts under Visible Light Irradiation." *J. Phys. Chem. C* 114(4): 1963-1968.
- Fujishima, A. and Honda, K. (1972). "Electrochemical photolysis of water at a semiconductor electrode." *Nature* 238: 37.
- Strataki, N., Bekiari, V., Dimitris, I., Kondarides and Lianos, P. (2007). "Hydrogen production by photocatalytic alcohol reforming employing highly efficient nanocrystalline titania films." *Applied Catalysis B: Environmental* 77: 184-189.
- Husin, H. (2013). "Fotokatalitik Dekomposisi Air menjadi hidrogen sebagai energi bersih dan ramah lingkungan." *Rona Lingkungan Hidup* 6(1): 13-21.
- Sreethawong, T., Suzuki, Y. and Yoshikawa, S. (2005). "Photocatalytic evolution of hydrogen over mesoporous TiO<sub>2</sub> supported NiO photocatalyst prepared by single-step sol-gel process with surfactant template." *International Journal of Hydrogen Energy* 30(10): 1053-1062.
- Sang, H. X., Wang, X. T., Fan, C. C. and Wang, F. (2012). "Enhanced photocatalytic H<sub>2</sub> production from glycerol solution over ZnO/ZnS core/shell nanorods prepared by a low temperature route." *International J. of Hydrogen Energy* 37: 1348-1355.
- Qin, Y., Wang, G. and Wang, Y. (2007). "Study on the photocatalytic property of La-doped CoO/SrTiO<sub>3</sub> for water decomposition to hydrogen." *Catalysis Communications* 8(6): 926-930.
- Liu, D.-R., Jiang, Y.-S. and Gao, G.-M. (2011). "Photocatalytic degradation of an azo dye using N-doped NaTaO<sub>3</sub> synthesized by one-step hydrothermal process." *Chemosphere* 83(11): 1546-1552.
- Chen, Y., Yang, H., Liu, X. and Guo, L. (2010). "Effects of cocatalysts on photocatalytic properties of La doped Cd<sub>2</sub>TaGaO<sub>6</sub> photocatalysts for hydrogen evolution from ethanol aqueous solution." *Int. J. Hydrogen Energy* 35(13): 7029-7035.
- Strataki, N., Antoniadou, M., Dracopoulos, V. and Lianos, P. (2010). "Visible-light photocatalytic hydrogen production from ethanol-water mixtures using a Pt-CdS-TiO<sub>2</sub> photocatalyst." *Catalysis Today* 151(1-2): 53-57.
- Porob, D. G. and Maggard, P. A. (2006). "Flux syntheses of La-doped NaTaO<sub>3</sub> and its photocatalytic activity." *Journal of Solid State Chemistry* 179(6): 1727-1732.