

BAB III

METODE PENELITIAN

1.1 Waktu dan Tempat Penelitian

Penelitian dilakukan di Laboratorium Kimia Organik dan Laboratorium Instrumentasi Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya mulai Maret hingga Juli 2017.

1.2 Alat Penelitian

Alat-alat yang digunakan dalam pembuatan katalis yaitu *hot plate stirrer* (JlabTech), timbangan analitik (Mettler Toledo AL204), batang pengaduk magnet, seperangkat alat tanur dan kolom modifikasi, *Autoclave Oil Batch Reactor* modifikasi, oven (memmert), seperangkat alat kromatografi lapis tipis (KLT), *micropipette* (Accumax Pro) *rotary evaporator* (IKA[®]HB10 Digital), *syring*, termometer 300⁰C, labu ukur 100 mL, erlenmeyer 250 mL, gelas kimia 250 mL, spatula, pipet tetes, corong pisah 250 mL, kertas pH Universal, kertas saring, corong gelas, neraca analitik *Ohaus Precision Advanced*, *X-Ray Diffraction* (XRD), *X-Ray Fluorescence* (XRF), *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX), Spektrofotometer *Ultraviolet Visible* (UV-Vis) *double beam* Shimadzu 1600 Series, Spektrofotometer *Fourier Transform-Infrared* (FT-IR) Shimadzu 8400S, dan *Gas Chromatography-Mass Spectrometer* (GCMS) Shimadzu QP2010S

1.3 Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan dalam pembuatan katalis ini adalah Nikel nitrat [Ni(NO₃)₂.6H₂O], silika (SiO₂), Zirkonil klorida [ZrOCl₂.8H₂O], Ammoniak (NH₃), fenol, diklorometana (CH₂Cl₂), natrium sulfat anhidrat (Na₂SO₄), Aqua demineralisasi, n-heksana, etil asetat, gas nitrogen HP (N₂), dan gas hidrogen UHP (H₂)

3.4 Rancangan dan Tahapan Penelitian

1. Pembuatan katalis Ni/SiO₂-ZrO₂
2. Karakterisasi katalis Ni/SiO₂-ZrO₂ .
3. Reaksi HDO senyawa fenol menggunakan katalis Ni/SiO₂-ZrO₂
4. Karakterisasi senyawa hasil reaksi HDO.

5. Analisis data

3.5 Prosedur Penelitian

3.5.1 Pembuatan Katalis Ni/SiO₂-ZrO₂

Pembuatan katalis Ni/SiO₂-ZrO₂ didasarkan pada penelitian yang dilakukan oleh Zhang (2013) dengan beberapa modifikasi, sebanyak 3,5 gram silika (SiO₂) dilarutkan dalam 15 mL akua demineralisasi dan 9,15 gram zirkonium oksida klorida oktahidrat (ZrOCl₂.8H₂O) dilarutkan dalam akua demineralisasi sampai larut sempurna, masing-masing dilakukan dalam beaker glass. ZrOCl₂.8H₂O yang telah dilarutkan dalam akuademieralisasi, selanjutnya direaksikan dengan amoniak secara sedikit demi sedikit sampai dengan pH 8 untuk menghasilkan Zr(OH)₄. Kemudian Zr(OH)₄ dicampurkan dengan SiO₂ dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 12 jam pada temperatur 75⁰C. Larutan campuran Zr(OH)₄ dan SiO₂ selanjutnya difiltrasi menggunakan kertas saring dan dicuci menggunakan akuadem. Padatan dikeringkan kurang lebih selama 3 hari. Hasil yang diperoleh berupa bubuk putih yang selanjutnya dilakukan kalsinasi di dalam tanur pada temperatur 500⁰C selama 5 jam yang dialiri oleh gas N₂ sehingga diperoleh SiO₂-ZrO₂

Nikel nitrat sebanyak 2,23 gram dilarutkan dalam akuademieralisasi hingga larut sempurna, yang selanjutnya dicampur dengan pengemban SiO₂-ZrO₂ yang telah diperoleh sebelumnya sebanyak 3 gram. Larutan campuran diaduk menggunakan magnetik stirer selama 12 jam. Padatan dikeringkan pada temperatur 120⁰C ±24 jam. Selanjutnya, dilakukan kalsinasi dan reduksi pada temperatur 500⁰C selama 5 jam yang dialiri gas N₂ dan reduksi yang dialiri gas H₂ pada temperatur dan waktu yang sama dengan kalsinasi sehingga diperoleh katalis Ni/SiO₂-ZrO₂.

Hasil akhir dari katalis dianalisis menggunakan, *X-Ray Diffraction (XRD)*, *X-Ray Flourescence (XRF)*, *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)*.

3.5.2 Karakterisasi Katalis Ni/SiO₂-ZrO₂

a. *X-Ray Diffraction (XRD)*

Katalis 15% Ni/SiO₂-ZrO₂ dikarakterisasi menggunakan *XRD X'Pert Graphics and Identify Philips Analytical*. Spesifikasi alat yang digunakan yaitu Sumber sinar X berasal dari logam tembaga (Cu)

dengan panjang gelombang $K\alpha_1$ sebesar 1,5406 Å. Sampel dianalisis pada sudut 2θ dari 0° sampai 80°

Karakterisasi katalis menggunakan metode serbuk. Sampel diletakkan pada *sample holder*. Tabung X-Ray dijalankan pada 30 mA dan 40kV selanjutnya akan menghasilkan sinar-X dengan panjang gelombang tertentu. Sinar tersebut ditembakkan pada sampel yang akan dianalisis sehingga menghasilkan data intensitas dan sudut difraksi (2θ) dari masing-masing katalis.

b. X-RayFlourescene (XRF)

Katalis 15% Ni/SiO₂-ZrO₂ dikarakterisasi menggunakan XRF Philips Analytical Minipal 4. Sampel diletakkan pada *sample tube* kemudian diletakkan pada *sample holder*. Uji XRF digunakan untuk mendapatkan % (b/b) logam Cu yang terkandung dalam katalis 15% Ni/SiO₂-ZrO₂

c. Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)

Katalis 15% Ni/SiO₂-ZrO₂ dikarakterisasi menggunakan SEM-EDX Phenom dengan cara meletakkan sampel pada *sample holder* yang terbuat dari karbon, kemudian dilakukan coating pada sampel dengan logam Au. Selanjutnya permukaan sampel difoto pada perbesaran 500x, 1000x, dan 5000x. SEM digunakan untuk mendapatkan morfologi katalis, sedangkan EDX digunakan untuk mendapatkan persebaran logam aktif pada permukaan katalis

3.5.3 Uji Aktivitas Katalis Ni/SZ Terhadap Reaksi Hidrodeoksigenasi (HDO)

Pada reaksi hidrodeoksigenasi menggunakan katalis Ni/SZ didasarkan pada penelitian yang telah dilakukan oleh Mahfud (2016) dengan beberapa modifikasi yaitu penggunaan fenol pada reaksi HDO. Uji aktivitas katalis dilakukan dengan cara mereaksikan di dalam di dalam *Autoclave Oil Batch Reactor*. Sebanyak 0,02 gr katalis Ni/SZ diaktivasi dahulu di dalam *Autoclave Oil Batch Reactor* dengan dialiri gas H₂ pada tekanan yang telah ditetapkan yaitu 40 psi dan temperatur sesuai variasi yang dikerjakan selama 1 jam. 0,5 gr fenol dan 20 ml pelarut berupa aqua demineralisasi ditambahkan yang selanjutnya diaduk menggunakan batang magnet selama 2 jam dengan variasi temperatur 150°C, 180°C dan 200°C. Hasil akhir dari reaksi

HDO dipisahkan, dipisahkan dari katalisnya dan diekstrak menggunakan diklorometana. Selanjutnya dianalisis menggunakan Spektrofotometer *Ultraviolet Visible* (UV-Vis), Spektrofotometer *Fourier Transform-Infrared* (FT-IR) dan *Gas Chromatography-Mass Spectrometer* (GC-MS).

1.5.4 Karakterisasi Produk Reaksi Hidrodeoksigenasi (HDO)

a. Spektrofotometer *Ultraviolet Visible* (UV-Vis)

Karakterisasi produk HDO menggunakan spektrofotometer UV-Vis *double beam* Shimadzu 1600 series. Karakterisasi dilakukan dengan cara membuat baseline alat menggunakan metanol pada panjang gelombang 200-600 nm terlebih dahulu. Kemudian sampel diukur absorbansi dan panjang gelombang maksimum pada panjang gelombang 200-600 nm. Spesifikasi UV-Vis yang digunakan adalah sebagai berikut:

Tipe alat : *Double beam* Shimadzu 1600 series
Panjang gelombang sinar : 340,8 nm

b. Spektrofotometer *Fourier Transform-Infrared* (FT-IR)

Karakterisasi produk HDO menggunakan spektrofotometer FTIR Shimadzu 8400. Karakterisasi dilakukan dengan cara meneteskan sampel yang berbentuk cairan pada lempengan NaCl. Selanjutnya lempengan diletakkan pada *sample holder* dan disinari dengan sinar inframerah. Pengukuran yang diperoleh akan menghasilkan data berupa hubungan persen transmittan (%T) dan bilangan gelombang (ν). Spesifikasi FT-IR yang digunakan adalah sebagai berikut :

Tipe alat : Shimadzu 8400
Interferometer : Tipe Michelson
Sistem optik : Sinar tunggal
Sumber inframerah : Keramik globular
S/N : 20000:1
Medium sampel : Lempengan NaCl

c. *Gas Chromatography-Mass Spectrometer* (GC-MS)

Karakterisasi produk HDO menggunakan GC-MS Shimadzu QP2010S. karakterisasi dilakukan dengan cara sebanyak 0,2 μL sampel diinjeksikan ke dalam spektrometri GC-MS. Pengukuran yang

diperoleh akan menghasilkan kromatogram dan spektra massa. Spesifikasi GC-MS yang digunakan adalah sebagai berikut:

Jenis kolom : Kolom agilent HP 5MS

Panjang kolom : 30 meter

Temperatur kolom : 50-200°C

Temperatur injektor : 300°C

Kecepatan aliran gas : 50 mL/menit

Gas pembawa : Gas helium

Kecepatan aliran gas : 40 mL/menit

Tekanan Gas : 12.0 kPa

Jenis pengion : EI 70 Ev

Split Ratio : 68,0