

## **BAB III**

### **METODOLOGI PENELITIAN**

Penelitian ini dilakukan dalam beberapa tahap, antara lain:

- Tahap persiapan modifikasi zeolit.
- Tahap preparasi Pd/Ce/zeolit dan Ce/Pd/zeolit
- Tahap karakterisasi dengan XRD.
- Tahap uji katalitik dengan menggunakan campuran gas CO dan oksigen.

#### **III. 1. Variabel Penelitian**

##### **III. 1. 1. Variabel Tetap**

- Berat zeolit dan tetrabutyl amonium bromida (TBABr)
- Suhu dan waktu hidrotermal
- Suhu dan waktu pengeringan
- Suhu dan waktu kalsinasi
- Suhu dan waktu reduksi
- Konsentrasi garam paladium
- Laju alir gas

##### **III. 1. 2. Variabel Berubah**

- Tahap impregnasi serum
- Konsentrasi garam serum

- Suhu uji katalitik

### III. 1.3. Variabel Yang Dinilai

- Komposisi mineral penyusun zeolit.
- Kristalinitas zeolit.
- Komposisi spesi paladium dan serium.
- Ukuran kristal spesi paladium dan serium.
- Aktivitas konversi gas CO

## III. 2. Peralatan dan Bahan

### III. 2. 1. Alat

- Difraktometer sinar x.
- Kromatografer gas (KG).
- Alat-alat gelas.
- Neraca analitik Mettler Toledo AB-204.
- Furnace 6000 Thermolyne.
- Autoklaf Vonavex 9619 1 L.
- Oven Memmert.
- Satu set reaktor kalsinasi dan reduksi.
- Satu set reaktor katalitik.

### III. 2. 2. Bahan

- Zeolit alam asal Wonosari (100 mesh).
- Akuabides
- Tetrabutyl amonium bromida ( $C_{16}H_{36}BrN$ ) Fluka Chemika p.a

- Garam  $\text{PdCl}_2$  (59 % Pd) Merck p.a
- HCl Merck p.a
- Garam  $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  Merck p.a
- Gas nitrogen ( $\text{N}_2$ ) PT. BOC Gasses (HP)
- Gas udara tekan ( $\text{O}_2$ ) PT. BOC Gasses
- Gas hidrogen ( $\text{H}_2$ ) PT. BOC Gasses (HP)
- Gas karbon monoksida ( $\text{CO}$ ) PT. BOC Gasses (HP)

### III. 3. Cara Kerja

#### III. 3. 1. Preparasi Katalis

##### III. 3. 1. 2. Preparasi Zeolit Aktif

1. Zeolit alam ditimbang sebanyak 200 g kemudian direndam dalam 365 mL HCl 2M dengan pengadukan selama 5 jam.
2. Campuran disaring dikeringkan pada suhu 120 °C.
3. Residu selanjutnya dicuci dengan aquades sampai netral, kemudian dikeringkan pada suhu 120 °C.
4. Zeolit terdeminalisasi dicampur dengan TBA Br sebanyak 60,724 g dan aquades 650 mL dalam autoklaf. Perlakuan dilakukan pada suhu 200 °C selama 48 jam dengan pengadukan berkala selama 5 menit setiap 1 jam.
5. Campuran dicuci dengan aquades dan dikeringkan pada suhu 120 °C selanjutnya dikalsinasi pada suhu 500 °C selama 5,5 jam dalam oven.

### III.3. 1. 3. Preparasi Pd/Ce/Zeolit

1. Larutan garam paladium sebanyak 17 mL dimasukkan ke dalam gelas piala berisi 20 g zeolit aktif, didiamkan selama 40,5 jam pada suhu kamar dan dikeringkan selama 6,5 jam pada suhu 120 °C.
2. Sampel kemudian dikalsinasi pada suhu 600 °C dengan dialiri gas N<sub>2</sub> selama 4 jam dan dialiri gas O<sub>2</sub> selama 1 jam dengan laju alir 10 mL/menit.
3. Diambil 15 g dari sampel, kemudian dicampurkan dengan 15 mL larutan Ce(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O dengan variasi konsentrasi 3 %, 5 % dan 7 %.
4. Setelah 40,5 jam, sampel dikeringkan pada suhu 120 °C selama 6,5 jam.
5. Sampel yang sudah kering kemudian dikalsinasi pada suhu 600 °C dengan dialiri gas N<sub>2</sub> selama 4 jam dan dialiri gas O<sub>2</sub> selama 1 jam yang kemudian direduksi dengan gas H<sub>2</sub> 900 °C selama 5 jam dengan laju alir 10 mL/menit.

### III.3. 1. 4. Preparasi Ce/Pd/Zeolit

Prosedur kerja seperti III. 3. 1.3., tetapi impregnasi pertama dengan logam Ce dan impregnasi kedua dengan logam Pd.

### III.3. 2. Karakterisasi Katalis Dengan Difraksi Sinar-X

Alat yang digunakan adalah difraktometer sinar-x tipe PW 3710 Based Philips dengan perangkat lunak APD (*Automatic Powder Diffraction*). Kondisi operasi adalah 40 kV dan 30 mA dengan menggunakan sumber radiasi CuK<sub>α</sub> ( $\lambda_1=1,54056 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2=1,54439 \text{ \AA}$ ). Interval pencatatan 0,2° 2 $\theta$ /1.25 detik. Sampel discan dari sudut 2 $\theta$  4,00° sampai 89,970°.

Preparasi sampel dilakukan terhadap sampel yang telah berbentuk bubuk dikeringkan pada 120 °C selama 3 jam, selanjutnya sampel ditempatkan pada plat sampel.

### **Analisa Kualitatif**

Analisa secara kualitatif pada difraktogram sinar-x dilakukan untuk mengidentifikasi jenis mineral penyusun zeolit dan spesi logam paladium maupun serium. Identifikasi dilakukan dengan mencocokkan data nilai  $d$  dengan nilai  $d$  spesifik mineral dan spesi logam standar yang memiliki intensitas maksimum (3 puncak utama) dari *Joint Committee on Powder Diffraction Standard* (JCPDS) dengan koreksi 0,01 – 0,02 %.

### **Analisa Kuantitatif**

Informasi kuantitatif yang didapat dari difraktogram sinar-x adalah komposisi mineral, kristalinitas, dan ukuran partikel spesi logam.

1. Komposisi mineral penyusun zeolit dihitung dari perbandingan luas area spesifik dari mineral-mineral yang ada.
2. Kristalinitas dihitung dari luas daerah dalam jangkauan  $18 - 40^\circ 2\theta$  yang telah terkoreksi. Prosentase kristalinitas didapatkan dengan membandingkan luas terkoreksi sampel dengan luas terkoreksi zeolit awal yang diasumsikan memiliki kristalinitas 100 %.
3. Ukuran partikel spesi logam pada katalis dengan menggunakan persamaan Scherrer.

### III.3.3. Uji Katalitik

Uji aktivitas katalis dilakukan menggunakan reaktor uji katalitik dengan umpan CO dan udara tekan sebagai sumber O<sub>2</sub> yang dialirkan pada reaktor. Hasil konversi gas dianalisa dengan kromatografi gas.

Kondisi operasi reaktor :

Berat katalis	: 3 gram
Laju alir CO	: 20 mL/menit
Laju alir O <sub>2</sub>	: 10 mL/menit
Suhu reaksi	: 300, 500, 700 °C
Lama pengambilan sampel	: 10 menit

#### Prosedur Pengujian

1. Katalis dikeringkan terlebih dahulu pada suhu 120 °C selama 1 jam.
2. Laju alir gas umpan yaitu CO dan O<sub>2</sub> diatur melalui flowmeter hingga stabil.
3. Temperatur reaktor diatur sesuai temperatur uji, setelah temperatur konstan, umpan gas dimasukkan dalam reaktor dan biarkan selama 10 menit.
4. Setelah 10 menit, gas yang keluar dari reaktor ditampung dalam tabung gas selama 12 menit.
5. Gas yang dihasilkan kemudian dianalisa dengan kromatografi gas. Hasil konversi didasarkan pada banyaknya CO<sub>2</sub> yang terbentuk sebanding dengan banyaknya gas CO yang teroksidasi.

**Kondisi Operasi KG :**

Tipe	: Varian Model 3700 GS
Jenis kolom	: DC-200 (N <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> )
Temperatur kolom	: 90 °C
Jenis detektor	: TCD (Thermal Conductor Detector)
Temperatur detektor	: 200 °C
Ukuran cuplikan	: 1 µL
Perangkat Lunak	: Program DELTA

