

DOKUMEN HKI/PATEN

## **KARYA CIPTA**

### **JUDUL**

PROTOTYPE KATALIS OKSIDA LOGAM AKTIF NANO-MULTISCALE  
(ZnO, CuO, TiO<sub>2</sub> DAN KOMPOSITNYA)

Pencipta :

**Dr. Rahadian Zainul, S.Pd., M.Si.**

**Miftahul Khair, S.Si, M.Sc., Ph.D.**

**UNIVERSITAS NEGERI PADANG**

TAHUN 2020

# PROTOTYPE KATALIS OKSIDA LOGAM AKTIF NANO-MULTISCALE (ZnO, CuO, TiO<sub>2</sub> DAN KOMPOSITNYA)

Dr Rahadian Zainul, S.Pd, M.Si. dan Miftahul Khair, S.Si, M.Sc., Ph.D.

Univerista Negeri Padang

## ABSTRAK

Pelat oksida tembaga telah digunakan sebagai bahan panel fotovoltaik cahaya tampak. Pada penelitian ini akan dikaji proses pembentukan oksida tembaga pada permukaan pelat tipis tembaga. Metode yang digunakan adalah oksidasi termal pelat tembaga dengan ketebalan 200-250 m. Evaluasi permukaan dan studi morfologi internal dari proses sintesis oksida dilakukan dengan menggunakan SEM, XRD dan DTA. Hasil analisis DTA memberikan informasi bahwa proses pelapisan struktur pelat tembaga terjadi pada suhu 370,44 °C. Analisis XRD pada pelat oksida tipis yang dikalsinasi pada suhu 380 °C selama 1 jam, terbentuk 92,6% Cu<sub>2</sub>O dan 6,4% CuO. Analisis permukaan dan morfologi, daerah oksida optimum terbentuk pada ketebalan 25 m dan serangan oksigen internal mencapai kedalaman maksimum 129 m. Ukuran agregat tembaga oksida terbentuk dalam partikel multiskala nano antara 300 - 800 nm.

**Kata kunci :** *Fotovoltaik Indoor, Tembaga Oksida, XRD, DTA, SEM*

## PENGANTAR

Pengembangan semikonduktor telah banyak dilakukan ( Chen et al. 2018b ; Cui et al. 2018 ; Dong et al. 2018 ; Dumitrescu et al. 2018 ; Gu et al. 2018 ; Liu et al. 2018b ; Shekhawat et al. 2018 ). Semikonduktor memiliki banyak keunggulan sebagai bahan dalam sistem sel dan pendukung pembuatan peralatan elektrokimia ( Zainul et al. 2015a ). Aplikasi yang lebih luas dapat digunakan sebagai bahan fotokatalis seperti oksida logam ZnO, TiO<sub>2</sub> dan oksida logam lainnya. Oksida logam ZnO telah digunakan sebagai fotokatalis dalam aplikasi degradasi dan transformasi asam humat dalam air gambut ( Zainul 2016c , b ). Aplikasi nanotube TiO<sub>2</sub> menggunakan Cu<sub>2</sub>O untuk peralatan fotovoltaik dan fotokatalitik ( Zangari 2014 ).

Salah satu semikonduktor yang menarik dipelajari saat ini adalah oksida tembaga ( Chen et al. 2018a ; Huang et al. 2018 ; Liu et al. 2018a ; Mosleh et al. 2018 ). Hal ini disebabkan kemampuan oksida tembaga yang dapat bekerja pada cahaya tampak. Rahadian et al (2015) telah melakukan penelitian dengan aplikasi semikonduktor Cu<sub>2</sub>O untuk proses pemisahan air dalam menghasilkan gas hidrogen. Tembaga oksida juga relatif murah dan tidak berbahaya bagi

lingkungan ( Zainul et al. 2015b ) . Proses pembuatan dan modifikasi semikonduktor  $\text{Cu}_2\text{O}$  juga relatif mudah ( Zainul 2016a ) .

Dalam penelitian sebelumnya telah dikembangkan bagaimana proses  $\text{Cu}_2\text{O}$  sintesis ( Chen, Zhang et al 2018a. ; Huang, Naresh et al 2018. ; Liu, Dong et al 2018a. , . Mosleh, Rahimi et al 2018 ) . Chien dkk. (2009) melaporkan sintesis dan karakterisasi  $\text{Cu}_2\text{O}$  sebagai tipe-p dan AZO (ZnO yang didoping Al). Sintesis  $\text{Cu}_2\text{O}$ /AZO membentuk kawat nano radial heterostruktur ( Chien-Lin Kuo 2009 ) . Sears dkk. (1984) telah mulai mensintesis oksida tembaga ( $\text{Cu}_2\text{O}$ ) dengan oksidasi termal ( Fortin 1984 ) . Melalui metode oksidasi, pembentukan  $\text{Cu}_2\text{O}$  lebih mudah terbentuk dan stabil. Seperti yang dilaporkan oleh Musa et al (1998) bahwa pada suhu  $1000^\circ\text{C}$ ,  $\text{Cu}_2\text{O}$  akan teroksidasi lebih lanjut menjadi  $\text{CuO}$  ( AO Musa 1998 ) .

Tidak seperti studi sebelumnya, pembentukan tipis  $\text{Cu}_2\text{O}$  piring semikonduktor belum dilaporkan secara luas. Sebelumnya, pelat dengan ketebalan 0,32 mm dilakukan oleh Rahadian et al (2015), dengan kemampuan sel mencapai  $277.364 \text{ Watt/m}^2$  ( Zainul, Alif et al. 2015a ) . Dalam penelitian ini, peneliti menyelidiki proses yang terjadi pada saat pembentukan semikonduktor pelat tipis  $\text{Cu}_2\text{O}$  dengan ketebalan yang lebih kecil dari penelitian sebelumnya. Evaluasi permukaan dilakukan dengan menggunakan peralatan Scanning Electron Microscope (SEM), sedangkan penampang melintang dilakukan untuk mendapatkan studi morfologi internal selama proses pembentukan pelat oksida tembaga tipis.

## **BAGIAN EKSPERIMENTAL**

### **Alat dan bahan**

Alat dan bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah SEM (Hitachi S-3400N), XRD ( PANalytical PW30 / 40), Oppo F1s Kamera Aperture F-2.0 16 MP, X-Ray Fluorescence , Differential Thermal Analysis , Furnace , Alat Analitik, dan Alat Timbangan Kacamata. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas, Plat Cu (PT Metalindo ) , asam asetat ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ ) (Merck),  $\text{NaOH}$  (Merck) dan aquades t .

### **Metode yang digunakan**

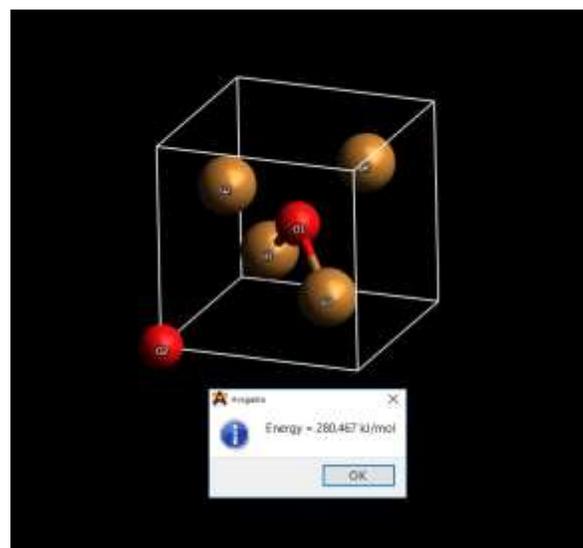
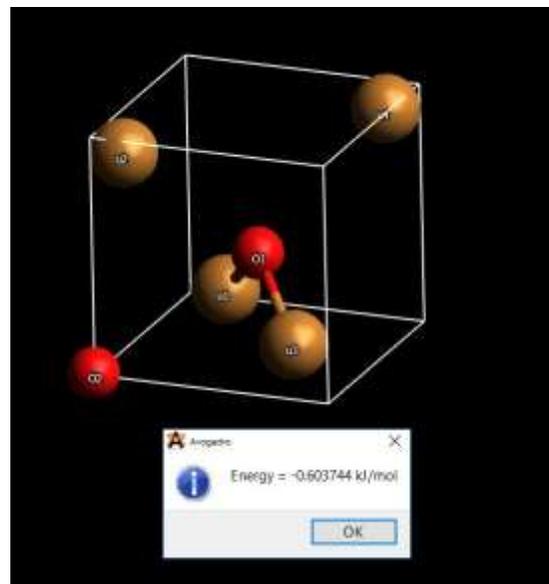
#### **Persiapan Piring Tembaga**

Plat tembaga yang digunakan adalah dari PT Metalindo dengan ketebalan 0,20 mm. Sebelum mempersiapkan pembuatan pelat tipis oksida tembaga , pelat ini diukur ketebalannya dan dicuci dengan asam asetat dan natrium hidroksida. Setelah dicuci dengan asam dan basa, pelat Cu dibilas dengan akuades , dan terakhir dikeringkan dengan oven pada suhu  $40-50^\circ\text{C}$  selama 15 menit. Selanjutnya Lempeng Cu dikarakterisasi dengan DTA, SEM dan XRF. Plat dipotong dengan ukuran 4 cm x 38,5 cm sebanyak 17 lempengan. Sebelum kalsinasi,

berat pelat ditimbang untuk mengetahui pertambahan berat setelah oksidasi kalsinasi berlangsung.

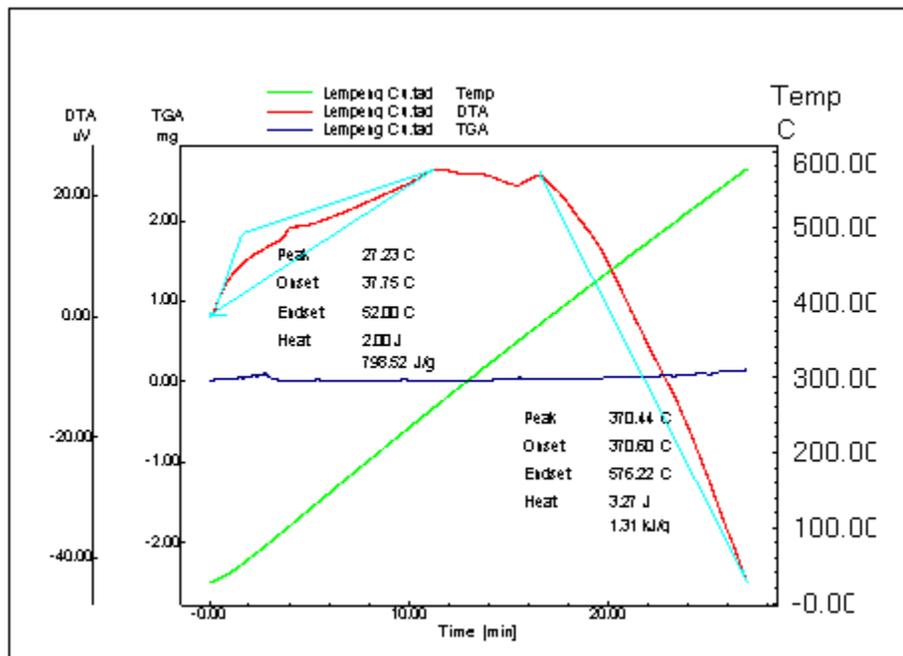
### Pembuatan Plat Tipis $\text{Cu}_2\text{O}$

Penyusunan  $\text{Cu}_2\text{O}$  piring dilakukan dengan teknik oksidasi pada suhu tinggi di bawah kondisi oksigen. Pelat Cu yang telah dibersihkan kemudian dikalsinasi dengan suhu waktu optimasi evaluasi dengan DTA selama waktu kalsinasi optimum. Lama kalsinasi sesuai dengan prosedur kerja pada penelitian sebelumnya dilaporkan Rahadian et al (2015), lama kalsinasi pelat Cu adalah 1 jam (Zainul, Alif et al. 2015a). Hasil cawan  $\text{Cu}_2\text{O}$  dikarakterisasi menggunakan XRD, XRF dan SEM.



## HASIL DAN DISKUSI

Hasil analisis DTA pada pelat Cu diperoleh pada suhu 380C atom Cu mulai mengalami proses penurunan struktur. Hal ini ditandai dengan penurunan pada suhu 370,44°C pada grafik DTA seperti terlihat pada Gambar 1. Pada gambar tersebut, pada suhu 370,44 °C tercapai titik kritis dimana jarak antar atom Cu pada permukaan pelat tembaga mulai bertambah besar. dan mengalami penempaan pertama. Pada suhu 380 ke atas, struktur permukaan menjadi lebih jauh antara jarak atom sehingga permukaan tembaga dapat menarik spesies atom lain di area permukaan, teradsorpsi dan akhirnya membentuk oksida tembaga. Peningkatan jarak antar atom inilah yang menyebabkan terjadinya perubahan kerapatan dan kerapatan atom atom Cu pada permukaan pelat.

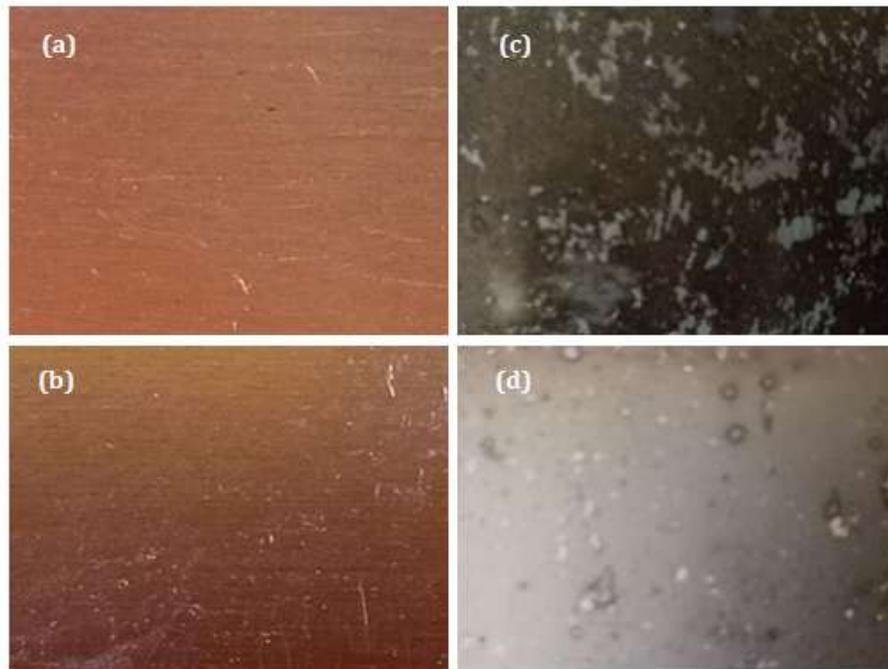


Gambar 1. Hasil DTA untuk Plat Tembaga

Dari analisis DTA, perubahan struktur tembaga di permukaan dapat diprediksi setelah suhu 370,44-370,60 tercapai. Perubahan struktur permukaan, menyebabkan migrasi atom atom tembaga ke daerah antarmuka pelat tipis, untuk berinteraksi dengan molekul oksigen molekuler. Proses migrasi ini mengakibatkan beberapa atom oksigen dalam keadaan molekuler masuk ke dalam celah dan area antarmuka mengembang karena pemolesan permukaan pelat

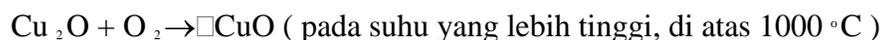
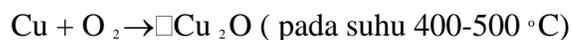
tembaga. Meningkatkan terjadinya tumbukan molekuler antara atom oksigen dan atom Cu, sehingga terbentuk senyawa oksidatornya.

Pada proses ini terjadi perubahan warna permukaan tembaga, dari kuning kemerahan menjadi kuning kecoklatan dan lebih pekat, seperti terlihat pada Gambar 2. Perubahan warna ini menunjukkan telah terjadi perubahan luas permukaan pelat Cu. Migrasi atom oksigen dari gas oksigen di daerah antarmuka menyebabkan terjadinya interaksi fisika dan kimia pada permukaan pelat tipis tembaga.

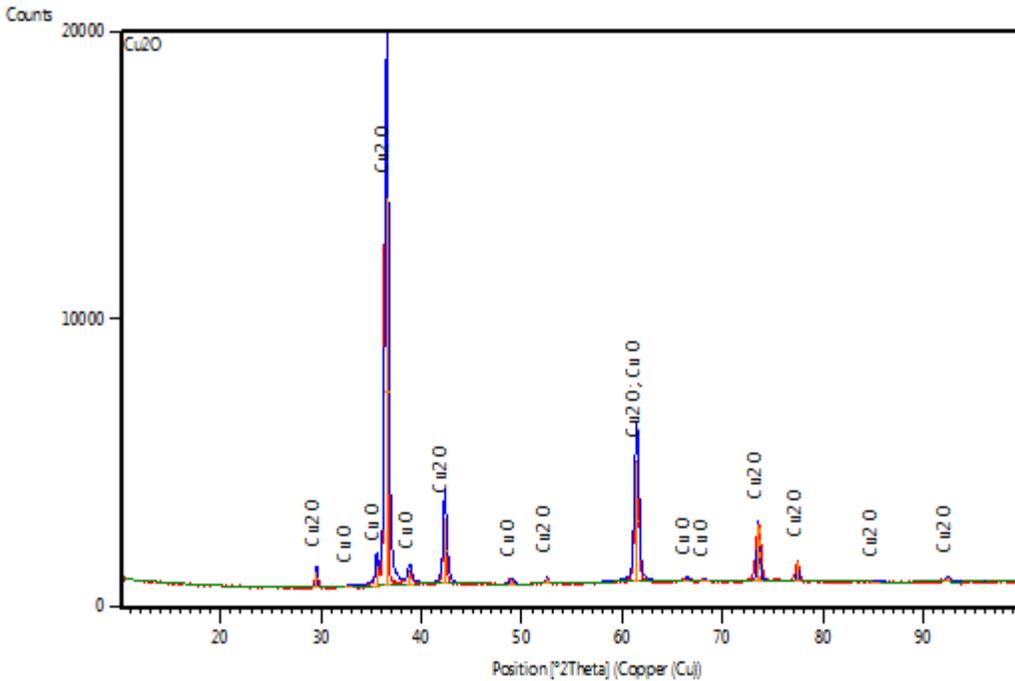


Gambar 2. Foto permukaan tembaga dengan Aperture F Camera F 2.0-16 MP Oppo F1s pada jarak 2 cm. (A) dan (b) permukaan pelat sebelum kalsinasi; (C) dan (d) permukaan pelat setelah kalsinasi

Reaksinya adalah molekul Oksigen bermigrasi ke permukaan pelat tembaga, bersama dengan jarak atom antara Cu pada antarmuka. Setelah terjadinya tumbukan antara atom Cu dan Oksigen, terjadi ikatan kimia sehingga terbentuknya oksida tembaga.



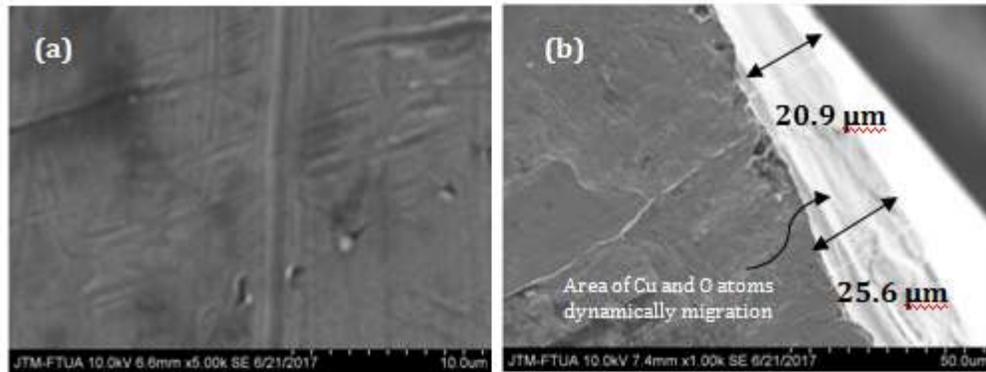
Reaksi dari  $\text{Cu}_2\text{O}$  pembentukan  $\text{O}$  dikonfirmasi dengan pemeriksaan XRD seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Hasil Analisis XRD Pelat Tipis Tembaga Setelah Kalsinasi

Dari hasil pemeriksaan XRD, sintesis plat tipis oksida tembaga dapat dilakukan dengan cara mengkalsinasi plat pada suhu  $380^\circ\text{C}$ . Perubahan permukaan adalah agregat oksida yang ditandai dengan puncak  $\text{Cu}_2\text{O}$  pada spektrum XRD. Dari hasil pemeriksaan permukaan pelat tembaga oksida tembaga diketahui bahwa 92,6% oksida adalah  $\text{Cu}_2\text{O}$  dan hanya 6,2%  $\text{CuO}$ . Hal ini terjadi karena selama proses kalsinasi 1 jam dan pendinginan selama 4 jam, mungkin ada atom oksigen yang terdesak dan mendorong oksidasi lebih lanjut sehingga atom  $\text{Cu}$  melepaskan 1 elektron lagi. Pada kondisi ini, bilangan oksidasi atom  $\text{Cu}$  pada permukaan pelat tipis meningkat dari 0 menjadi +1 dan dari +1 menjadi +2. Namun, persentase dengan oksidasi lanjutan masih relatif kecil.

Analisis permukaan pelat tembaga menggunakan Scanning Electron Microscopes (SEM) memberikan informasi termal bahwa proses oksidasi dimulai dengan pengembangan atau jarak tambahan antara atom permukaan pelat tembaga tipis. Pada permukaan tembaga sebelum dilakukan kalsinasi, keseragaman atom atom  $\text{Cu}$  terdistribusi dan beberapa bagian memiliki cacat permukaan seperti terlihat pada Gambar 4. a .

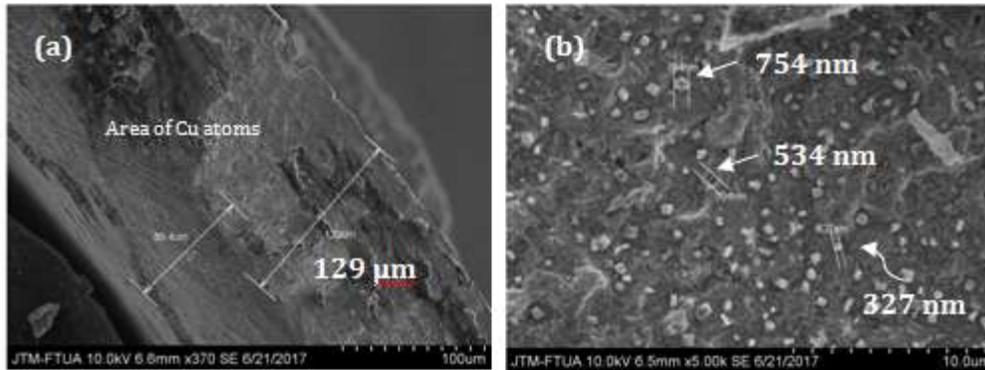


Gambar 4. SEM Gambar dari Cu Plate dengan 5000 x pembesaran (a) permukaan Cu Plate dengan 200-250  $\mu$  m ketebalan dan (b) internal Morfologi (Cross-Section) dari Cu dan O atom migrasi daerah

Pada bagian morfologi internal pelat seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.b., area antarmuka di mana atom atom Cu akan bermigrasi secara dinamis pada titik suhu kritis dan atom atom oksigen dapat bermigrasi ke permukaan pelat hingga kedalaman 20,9 m -25,6 mikron . Di area inilah evaluasi pembentukan oksida tembaga paling mungkin terjadi seperti yang dilaporkan oleh rahadian et al (2015). Dari hasil SEM seperti terlihat pada Gambar 4.b. tahap pembentukan oksida dimulai dengan dinamika molekul pada daerah antarmuka karena terjadi tumbukan antara atom Cu dan atom atom O.

Interaksi selama satu jam pembakaran pada temperatur 380oC, memberikan pertambahan berat pada plat tembaga seperti terlihat pada Tabel 1. Plat tembaga meningkat, karena terbentuknya oksida tembaga pada permukaan plat dengan ketebalan mencapai 25 m . Dari hasil SEM internal transversal, pemuaiian atau pertambahan jarak atom Cu selama pemanasan mencapai kisaran 50 m , 80 m hingga 129 m . Analisis ini memungkinkan bahwa pada pelat Cu dengan ketebalan 200 m - 250 m , selama kalsinasi telah terjadi serangan oksigen internal seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.a.

Pada Gambar 5.b. Terlihat beberapa agregat terbentuk pada permukaan dan pada pelat oksida internal dengan ukuran yang bervariasi. Berbentuk kubus dan tidak beraturan multiskala dengan panjang sisi 327 nm, 534 nm, dan 754 nm. Ini menjelaskan bahwa permukaan pelat oksida tipis yang terbentuk selama kalsinasi dengan teknik oksidasi termal memberikan ukuran dan struktur permukaan multiskala, dan partikel berukuran nano .



Gambar 5 . SEM Gambar dari plat oksida tembaga tipis dengan 5000 x pembesaran (a) Penampang dari  $\text{Cu}_2\text{O}$  Plate dengan 200  $\mu\text{m}$  ketebalan dan (b) Nano  $\text{Cu}_2\text{O}$  partikel multiskala

Hal ini sesuai dengan penelitian sebelumnya yang telah dilaporkan oleh Moses et al (1998) dan Sears et al (1984). Dalam penelitian ditemukan bahwa pembentukan oksida tembaga mulai terjadi pada suhu 400oC sampai 1000oC ( Fortin 1984 ; AO Musa 1998 ). Pada proses pertama terbentuk senyawa  $\text{Cu}_2\text{O}$  dan dengan naiknya suhu maka  $\text{Cu}_2\text{O}$  akan teroksidasi lebih lanjut membentuk  $\text{CuO}$  .

## KESIMPULAN

Sintesis oksida tembaga pada pelat tipis tembaga (ketebalan 200-250 m) berhasil dilakukan pada suhu 380oC selama 1 jam. Hasil karakterisasi DTA, SEM dan XRD memberikan informasi bahwa selama oksidasi termal terbentuk 92,6%  $\text{Cu}_2\text{O}$  dan 6,4%  $\text{CuO}$  dengan ketebalan 25 m dan serangan oksigen maksimum pada kedalaman 129 m. Oksida yang terbentuk pada proses oksidasi dapat diterapkan pada panel fotovoltaik cahaya tampak dengan penelitian lanjutan sifat fisik dan bahan optik untuk mendapatkan bahan dengan fungsi fotovoltaik yang sesuai.

## PENGAKUAN

Terima kasih kepada Pemerintah Republik Indonesia, Kementerian Teknologi, Riset dan Pendidikan Tinggi ( Menristeksikdi ) atas Grand Research Riset Unggulan Perguruan Tinggi Tahun 2017 -2018 , dan Laboratorium Kimia Universitas Negeri Padang dan Laboratorium Material Jurusan Teknik Mesin , Universitas Andalas . Terima kasih kepada tim peneliti mahasiswa S1 Kimia UNP dan Tim Peneliti dari Zainul untuk Advanced Material Processing (ZAMP).

## REFERENSI

- AO Musa, TA a. MJC 1998, Bahan Energi Surya dan Sel Surya, 51.
- Chen, L., dkk. 2018a, Spectrochimica acta Bagian A, Spektroskopi molekuler dan biomolekuler, 189, 608.
- Chen, W., dkk. 2018b, skala nano.
- Chien-Lin Kuo, R.-CW, Jow-Lay Huang, Chuan-Pu Liu, Chun-Kai Wang, Sheng-Po Chang, Wen-Huei Chu, Chao-Hung Wang and Chia-hao Tu 2009, Nanoteknologi (Penerbitan IOP ), 20.
- Cui, C., dkk. 2018, surat Nano, 18, 1253.
- Dong, M., Y. Wang, Z. Li, Z. Weng & N. Yu 2018, Jurnal nanosains dan nanoteknologi, 18, 5686.
- Dumitrescu, E., DP Karunaratne, SV Babu, KN Wallace & S. Andreescu 2018, Chemosphere, 192, 178.
- Fortin, WMS a. E. 1984, Bahan Energi Surya, 10.
- Gu, X., L. Shaw, K. Gu, MF Toney & Z. Bao 2018, Komunikasi alam, 9, 534.
- Huang, MH, G. Naresh & HS Chen 2018, bahan & antarmuka terapan ACS, 10, 4.
- Liu, C., H. Dong, N. Wu, Y. Cao & X. Zhang 2018a, bahan & antarmuka terapan ACS.
- Liu, W., dkk. 2018b, bahan & antarmuka terapan ACS, 10, 4844.
- Mosleh, S., MR Rahimi, M. Ghaedi, K. Dashtian & S. Hajati 2018, Ultrasonics sonochemistry, 40, 601.
- Shekhawat, GS, dkk. 2018, ACS nano.
- Zainul, R. 2016a, Der Pharma Chemica, 8, 388.
- Zainul, R. 2016b, Surat Der Pharmacia, 8, 176.
- Zainul, R. 2016c, Surat Der Pharmacia, 8, 120.
- Zainul, R., A. Alif, H. Aziz, S. Arief, S. Dradjad & E. Munaf 2015a, Jurnal Penelitian Ilmu Farmasi, Biologi dan Kimia 6(4), 353.
- Zainul, R., A. Alif, H. Aziz, A. Yasthopi, S. Arief & Syukri 2015b, Jurnal Penelitian Kimia dan Farmasi, 7(11), 57.
- Zangari, L.-k. T. a. G. 2014, Electrochimica Acta, 128, 341.