

## HIDRODEOKSIGENASI GLISEROL MENGGUNAKAN KATALIS GRAFENA OKSIDA TEREDUKSI YANG TERMODIFIKASI PLATINUM: KAJIAN TEORETIS BERBASIS *DENSITY FUNCTIONAL THEORY*

PATRIK CHANDRA  
23/526170/PPA/06636

### INTISARI

Konversi gliserol menjadi senyawa diol adalah salah satu cara mengatasi kelebihan produksi gliserol sebagai produk samping dari reaksi transesterifikasi, saponifikasi, hidrolisis dan hidrogenasi minyak serta lemak yang terus meningkat setiap tahunnya. Pada penelitian ini telah dilakukan kajian komputasi berbasis teori fungsi kerapatan (DFT) guna memprediksi aktivitas katalitik platinum-grafena oksida tereduksi (Pt-rGO) pada reaksi hidrideoksigenasi (HDO) gliserol. Fungsi pertukaran-korelasi PBEsol dengan basis pseudopotensial *ultrasoft* digunakan untuk memperoleh nilai energi adsorpsi dan energi pembentukan serta menentukan kerapatan orbital molekul dan struktur pita katalis. Penambahan 1 atom oksigen pada grafena induk yang tersusun atas 32 atom karbon dilakukan untuk memperoleh model rGO. Model platinum yang dipilih adalah klaster Pt<sub>4</sub> dengan geometri tetrahedral. Selektivitas senyawa diol yang terbentuk menggunakan katalis Pt-rGO ditentukan dengan metode *nudged elastic band*. Model reaksi katalitik yang dikaji mencakup model Eley-Rideal (ER) dan Langmuir-Hinshelwood (LH).

Hasil studi DFT menunjukkan bahwa energi pembentukan rGO dan energi adsorpsi Pt pada rGO bernilai negatif yang menandakan bahwa kedua proses bersifat spontan. Adsorpsi gliserol dan produk senyawa diol pada Pt-rGO juga bersifat spontan. Pergeseran puncak kerapatan orbital molekul katalis Pt-rGO lebih mendekati energi Fermi dibandingkan rGO. Struktur pita rGO dengan komposisi 1 atom O dan 32 atom C menunjukkan pergeseran titik Dirac, tetapi karakter *gapless* dari grafena induk tetap dipertahankan. Penambahan 1 gugus OH dan 1 atom O menghilangkan karakter *gapless* dan mulai menunjukkan adanya celah pita yang terbentuk. Pada model ER, reaksi cenderung mengarah ke pembentukan 1,3-propanadiol dengan nilai energi aktivasi 1,02 eV. Pada model LH, reaksi mengarah ke pembentukan 1,2-propanadiol dengan tahap penentu laju reaksi berupa pembentukan ikatan C-H dengan nilai energi aktivasi 0,75 eV.

Kata kunci: gliserol, hidrideoksigenasi, platinum-grafena oksida tereduksi, teori fungsi kerapatan

## **GLYCEROL HYDRODEOXYGENATION USING REDUCED GRAPHENE OXIDE MODIFIED WITH PLATINUM CATALYST: A DFT-BASED THEORETICAL STUDY**

PATRIK CHANDRA  
23/526170/PPA/06636

### **ABSTRACT**

Glycerol utilization into diol compounds is an effective way to tackle the oversupply issue caused by reactions such as transesterification, saponification, hydrolysis, and hydrogenation of oils and fats that produce glycerol as side product. Herein, theoretical investigation using density functional theory (DFT) approach on glycerol hydrodeoxygenation using platinumium-reduced graphene oxide (Pt-rGO) catalyst has been done. PBEsol exchange-correlation function combined with ultrasoft pseudopotentials were employed to calculate adsorption and formation energy as well as obtaining the density of states and band structure of the catalysts. The rGO material was modelled by adding 1 oxygen atom on a graphene made up of 32 carbon atoms. Platinum model used in this study was Pt<sub>4</sub> bearing tetrahedral geometry. Product selectivity using Pt-rGO catalyst was investigated using nudge elastic band method (NEB). Two catalytic models were studied, namely Eley-Rideal (ER) and Langmuir-Hinshelwood (LH) for the HDO process.

The DFT study showed negative value on the formation energy of rGO as well as adsorption energy of Pt on rGO surface, indicating spontaneous process. Adsorption energy of glycerol and diol products on Pt-rGO surface were also negative. Density of states (DOS) of Pt-rGO displayed peaks that shifted closer to the Fermi energy compared to rGO. Band structure of rGO consists of 32 C atoms and 1 O atoms only showed shifting of Dirac point, maintaining the gapless characteristic of pristine graphene. However, further modification of said rGO model with hydroxyl and another epoxide group removed the gapless character and generate small band gap. Using ER model, the product selectivity lean towards 1,3-propanediol formation with E<sub>a</sub> value of 1.02 eV. Nonetheless, when using LH model, the E<sub>a</sub> for 1,2-propanediol production is lower than 1,3-propanediol. Rate determining step using said model was discovered to be the C-H bond formation with E<sub>a</sub> value of 0.75 eV.

**Keyword:** density functional theory, glycerol, hydrodeoxygenation, platinum-reduced graphene oxide