

**RANCANG BANGUN REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR
PELAT MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK
METANA UNTUK PRODUKSI NANOKARBON DAN
HIDROGEN**

SKRIPSI

**REFANI ISKANDAR
0606076721**



**UNIVERSITAS INDONESIA
FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
DESEMBER 2009**

**RANCANG BANGUN REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR
PELAT MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK
METANA UNTUK PRODUKSI NANOKARBON DAN
HIDROGEN**

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana

**REFANI ISKANDAR
0606076721**



**UNIVERSITAS INDONESIA
FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
DESEMBER 2009**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri, dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk telah saya nyatakan dengan benar.

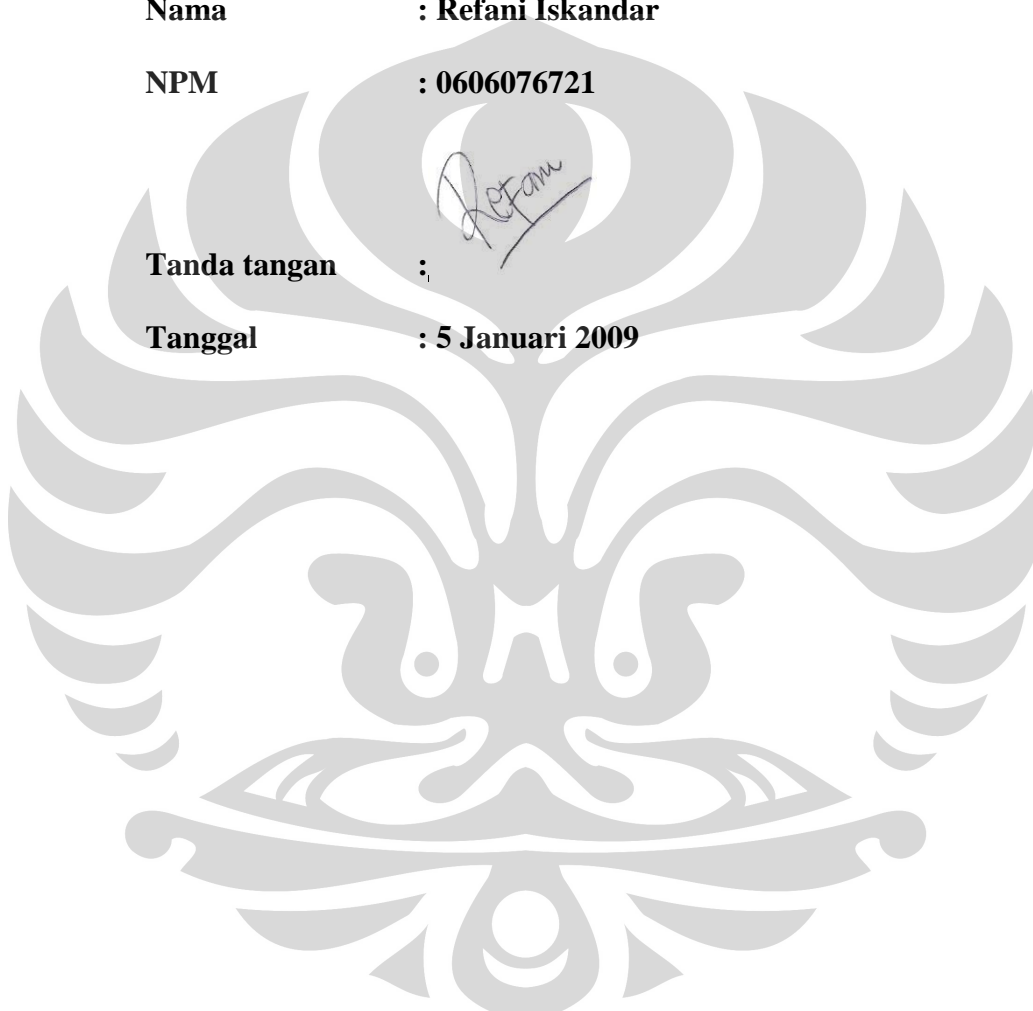
Nama : Refani Iskandar

NPM : 0606076721

Tanda tangan :



Tanggal : 5 Januari 2009



HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh :
Nama : Refani Iskandar
NPM : 0606076721
Program Studi : Teknik Kimia
Judul Skripsi : Rancang Bangun Reaktor Katalis Terstruktur Pelat melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Produksi Nanokarbon dan Hidrogen.

Telah berhasil dipertahankan dihadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik pada Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia.

DEWAN PENGUJI

Pembimbing I : Ir. Praswasti PDK Wulan, MT.
Pembimbing II : Dr. rer. nat. Ir. Yuswan Muharam, MT
Penguji I : Ir. Dijan Supramono, MSc
Penguji II : Ir. Mahmud Subandriyo, MSc. PhD

(*Praswasti*)

(*Yuswan*)

(*Dijan*)

(*Mahmud*)

Ditetapkan di : Depok
Tanggal : 17 Desember 2009

UCAPAN TERIMA KASIH

Puji dan syukur kepada Tuhan Yang Maha Esa atas berkat dan rahmat-Nya skripsi ini dapat diselesaikan tepat pada waktunya. Skripsi ini disusun untuk memenuhi sebagian persyaratan akademis dalam meraih gelar Sarjana Teknik di Program Studi Teknik Kimia pada Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

Pada penulisan skripsi ini, penulis mendapatkan banyak bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak. Pada kesempatan ini, penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Tuhan Yang Maha Esa
2. Ir. Praswasti PDK Wulan, MT dan Dr. rer. nat Yuswan Muharam, MT selaku pembimbing dalam riset grup Karbon *Nanotube*
3. Prof. Dr. Ir. Widodo Wahyu Purwanto, DEA selaku ketua Departemen Teknik Kimia FTUI dan pembimbing skripsi penulis
4. Seluruh keluarga atas segala perhatiannya selama ini.
5. Francy, Herry, Peter, Anindya, dan Riyandi sebagai rekan satu pembimbing atas bantuan dan semangatnya
6. Kang Jajat dan Mang Ijal dalam memberikan bantuan perbaikan alat dan masukan selama berada di laboratorium.
7. Teman-teman Teknik Kimia UI angkatan 2005 atas masukan, dan dukungannya
8. Ira Yulianti, Shantya, Dwi. Y, Estu, dan Riska atas bantuan ilmu dan literatur yang telah diberikan.
9. Mas Opik atas bantuannya dalam mencari literatur serta Mas Sriyono atas segala bantuannya dalam pelaksanaan penelitian ini

Penulis menyadari bahwasasih terdapat banyak kekurangan dalam penulisan skripsi ini. Untuk ini, saran dan kritik sangat diharapkan penulis untuk memperbaiki penulisan di masa mendatang. Semoga skripsi ini membawa manfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Depok, Januari 2009

Penulis

**HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS
AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS**

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang betrandu tangan di bawah ini:

Nama : Refani Iskandar
NPM : 0606076721
Program Studi : Teknik Kimia
Departemen : Teknik Kimia
Fakultas : Teknik
Jenis Karya : Skripsi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif (*Non-exclusive Royalty-Free Right*)** atas karya ilmiah saya yang berjudul:

RANCANG BANGUN REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR PELAT
MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK METANA UNTUK
PRODUKSI NANOKARBON DAN HIDROGEN.

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok

Pada tanggal : 5 Januari 2009

Yang menyatakan,



(Refani Iskandar)

ABSTRAK

Nama : Refani Iskandar
Program Studi : Teknik Kimia
Judul : Rancang Bangun Reaktor Katalis Terstruktur Pelat melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Produksi Nanokarbon dan Hidrogen

Penelitian ini dilakukan untuk mendapatkan rancangan reaktor katalis terstruktur pelat sejajar yang digunakan untuk memproduksi nanokarbon dan hidrogen melalui reaksi dekomposisi katalitik metana. Katalis yang digunakan adalah katalis multimetal Ni-Cu-Al 3:2:1. Pada reaktor katalis terstruktur pelat sejajar ini dilakukan pengujian untuk 20 menit dan 355 menit reaksi. Pada 20 menit reaksi, konversi metana tertinggi yang didapat adalah 70,16% dengan kemurnian hidrogen 74,29% dan *yield* karbon 2,58 gram. Pada 355 menit reaksi, didapatkan bahwa konversi metana mengalami penurunan dari 76,15% hingga 46,06% dan naik kembali pada menit ke-235 sebesar 59,90% kemudian cenderung stabil setelah menit ke-235. Pada 6 jam reaksi uji stabilitas, *yield* karbon yang dihasilkan 17,25 gram.

Kata kunci : reaksi dekomposisi katalitik metana, nanokarbon, hidrogen, katalis terstruktur pelat sejajar.

ABSTRACT

Name : Refani Iskandar

Study Program : Chemical Engineering

Title : Construction of Plate Catalyst Structured to Produce Nanocarbon and Hydrogen by Catalytic Decomposition of Methane

The purpose of this research is to construct plate catalyst structured to produce nanocarbon and hydrogen with catalytic decomposition of methane. Catalyst which is used in this research is multimetal catalyst, Ni-Cu-Al 3:2:1. Two experiment that had already done were twenty minutes and 355 minutes reactions. The highest conversion of methane is 70,16% and 74,29% hydrogen purity for twenty minutes reaction and yield carbon was 2,58 gram. For 355 minutes reaction, the conversion of methane decreasing from 76,15% to 46,06% and increase to 59,90%. After that, methane conversion relative stabil. After 355 minutes reaction , yield carbon was 17,25 gram.

Keywords : catalytic decomposition of methane, nanocarbon, hydrogen, plate catalyst structured.

DAFTAR ISI

| | |
|--|------|
| JUDUL..... | ii |
| PERNYATAAN ORISINALITAS..... | iii |
| HALAMAN PENGESAHAN..... | iv |
| UCAPAN TERIMA KASIH..... | v |
| PERSETUJUAN PUBLIKASI..... | vi |
| ABSTRAK..... | vii |
| ABSTRACT..... | viii |
| DAFTAR ISI..... | ix |
| DAFTAR GAMBAR..... | xi |
| DAFTAR TABEL..... | xiii |
| DAFTAR LAMPIRAN..... | xiv |
| DAFTAR SINGKATAN..... | xv |
| DAFTAR NOTASI..... | xvi |
| BAB I..... | 1 |
| PENDAHULUAN..... | 1 |
| 1.1 Latar Belakang..... | 1 |
| 1.2 Rumusan Masalah..... | 4 |
| 1.3 Tujuan Penelitian..... | 4 |
| 1.4 Batasan Masalah..... | 4 |
| 1.5 Sistematika Penelitian..... | 5 |
| BAB II..... | 6 |
| TINJAUAN PUSTAKA..... | 6 |
| 2.1 Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana..... | 6 |
| 2.2 Produk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana..... | 7 |
| 2.2.1 Nanokarbon..... | 7 |
| 2.2.2. Karbon <i>Nanotube</i> | 9 |
| 2.2.2.1. Single-walled dan Multiwalled Carbon Nanotubes..... | 9 |
| 2.3. Sintesis Karbon <i>Nanotube</i> | 12 |
| 2.4. Perancangan Reaktor..... | 13 |
| 2.4.1. <i>Fixed Bed Reactor</i> | 13 |

| | |
|--|----|
| 2.4.2 <i>Fluidized Bed Reactor</i> | 14 |
| 2.4.3 Reaktor Katalis Terstruktur | 18 |
| 2.4.4. Reaktor CVD | 20 |
| 2.5. Stainless Steel | 23 |
| 2.6. Mekanisme Pertumbuhan Karbon pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana..... | 24 |
| 2.7. Preparasi Katalis..... | 26 |
| 2.7.1 Pengaruh Komposisi Katalis | 26 |
| 2.7.2. Pengaruh Asam Sitrat | 29 |
| 2.7.3. Pengaruh asam nitrat | 30 |
| 2.7.4. Metode sol-gel | 31 |
| 2.8. Teknik Pelapisan <i>Dip-Coating</i> | 31 |
| 2.9. <i>Residence time</i> | 32 |
| BAB III | 33 |
| METODE PENELITIAN..... | 33 |
| 3.1 Tahap Penelitian..... | 33 |
| 3.2. Alat dan Bahan..... | 34 |
| 3.3. Prosedur Penelitian..... | 35 |
| BAB IV | 41 |
| HASIL DAN PEMBAHASAN..... | 41 |
| 4.1. Perancangan Reaktor dan Internal Reaktor Katalis Terstruktur Pelat | 41 |
| 4.2. Preparasi dan Karakterisasi Katalis..... | 48 |
| 4.3. Pelapisan Katalis pada Pelat Sejajar | 50 |
| 4.4. Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Sejajar Selama 20 menit..... | 53 |
| 4.4.1. Konversi Metana..... | 54 |
| 4.4.2. Kemurnian Hidrogen..... | 55 |
| 4.5. Uji Aktivitas Reaktor Katalis Terstruktur selama 6 jam..... | 57 |
| KESIMPULAN DAN SARAN..... | 60 |
| 5.1. KESIMPULAN | 60 |
| 5.2. SARAN..... | 60 |
| DAFTAR PUSTAKA | 61 |
| LAMPIRAN..... | 65 |

DAFTAR GAMBAR

| | |
|--|----|
| Gambar 2.1. Beragam struktur nanokarbon..... | 9 |
| Gambar 2.2. Struktur CNT (Rao, C.N., 2001)..... | 10 |
| Gambar 2.3. Lembaran <i>graphene</i> digulung membentuk <i>CNT</i> | 10 |
| Gambar 2.4. (a) Dua jenis <i>CNT</i> yang berbeda sifatnya (a dan b) digabungkan membentuk struktur c. (b) <i>Armchair</i> bersifat logam-konduktor dan zigzag-chiral/intermediate bersifat semi konduktor | 11 |
| Gambar 2.5. Plasma CVD..... | 12 |
| Gambar 2.6. <i>Smalley-type laser ablation</i> (a), <i>Ultrafast-pulsed laser ablation</i> (b) 13 | |
| Gambar 2.7. Spouted bed reactor: (1) dinding luar reaktor, (2) spouting zone, (3) katalis, (4) electric heater, (5) pre-heater, dan (6) filter..... | 14 |
| Gambar 2.8. Sistem reaktor: (1) fluidized bed reactor, (2) electric heater, (3) flow meter, (4) suhu controller, (5) pre-heater, dan (6) filter..... | 16 |
| Gambar 2.9. Two-stage <i>fluidized bed reactor</i> | 17 |
| Gambar 2.10. Skema <i>Fluidized Bed Reactor</i> Semi Kontinu Skala Pilot | 18 |
| Gambar 2.11. Substrat anyaman kawat (gauze) baja sebelum (a) dan (b) setelah dibentuk..... | 18 |
| Gambar 2.12. Reaktor katalis terstruktur sebelum reaksi (c) dan (d, e) setelah reaksi | 19 |
| Gambar 2.13. (a) Katalis terstruktur sebelum reaksi | 19 |
| Gambar 2.13 (b). Katalis terstruktur setelah reaksi | 19 |
| Gambar 2.14. Hasil SEM nanotube karbon..... | 20 |
| Gambar 2.15. Hasil TEM (a) Single-wall nanotubes dan (b) Double-wall nanotubes | 21 |
| Gambar 2.16. Sistem Reaktor Thermal-CVD | 21 |
| Gambar 2.17. Mekanisme Pertumbuhan CNT dengan Metode CVD | 22 |
| Gambar 2.18. Struktur CNT pada Substrat | 22 |
| Gambar 2.19. Reaktor CNT (Huan Wang, 2007) | 22 |
| Gambar 2.20. Mekanisme Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana | 24 |
| Gambar 2.21. Pertumbuhan Karbon Nano Tube | 26 |

| | |
|--|----|
| Gambar 2.22 Grafik Konversi Metana dan Konsentrasi Hidrogen | 28 |
| Gambar 3. 1 Diagram Produksi Nanokarbon dengan Reaktor Gauze | 34 |
| Gambar 3.2 Struktur Konfigurasi Pelat | 36 |
| Gambar 3.3 Set-up Rangkaian Reaktor | 38 |
| Gambar 4.1 Desain Reaktor Dalam Keadaan Tertutup | 41 |
| Gambar 4.2 Desain Reaktor Dalam Keadaan Terbuka | 42 |
| Gambar 4.3 Seal Penutup Reaktor | 42 |
| Gambar 4.4 Desain Reaktor dan <i>Furnace</i> | 43 |
| Gambar 4.5 Realisasi Desain <i>Furnace</i> | 43 |
| Gambar 4.6 Desain Rak Pelat | 44 |
| Gambar 4.7 Konfigurasi Pelat | 44 |
| Gambar 4.8a Set-up Rangkaian Reaktor | 46 |
| Gambar 4.8b Set-up Rangkaian Reaktor Lanjutan | 46 |
| Gambar 4.9 Layout Penelitian Secara Keseluruhan | 47 |
| Gambar 4.10 Larutan <i>sol-gel</i> katalis | 49 |
| Gambar 4.11 Sampel Karakterisasi XRF | 49 |
| Gambar 4.12 Pelapisan Substrat dengan Metode <i>Dip-Coating</i> | 51 |
| Gambar 4.13 Pengeringan Pelat | 52 |
| Gambar 4.14 Grafik Profil Suhu | 54 |
| Gambar 4.15 Rangkain Penelitan untuk Uji Aktifitas | 54 |
| Gambar 4.16 Grafik Profil Konversi Metana Pada Uji Aktifitas | 55 |
| Gambar 4.17 Grafik Profil Kemurnian Hidrogen pada Uji Stabilitas..... | 56 |
| Gambar 4.18 a) Pola Aliran pada Pelat Datar; (b) Grafik Ketebalan Boundary Layer dan Koefisien Perpindahan Massa pada Aliran Laminar dan Turbulen..... | 57 |
| Gambar 4.19 Grafik Yield karbon Setelah 20 menit Reaksi | 57 |
| Gambar 4.20 Grafik Profil Konversi Metana Pada Uji Aktivitas | 58 |
| Gambar 4.21 Grafik Profil Kemurnian Hidrogen pada Uji Aktivitas..... | 59 |
| Gambar 4.22 Grafik Yield Karbon Pada Uji Aktivitas | 59 |

DAFTAR TABEL

| | | |
|-----------|--|----|
| Tabel 2.1 | Komposisi katalis dan hasilnya..... | 27 |
| Tabel 2.2 | Korelasi Data Konsentrasi Asam Sitrat dengan Metal Ion | 28 |
| Tabel 4.1 | Komposisi Atomik / Molar Katalis..... | 49 |
| Tabel 4.2 | <i>Loading</i> Katalis pada Substrat | 51 |



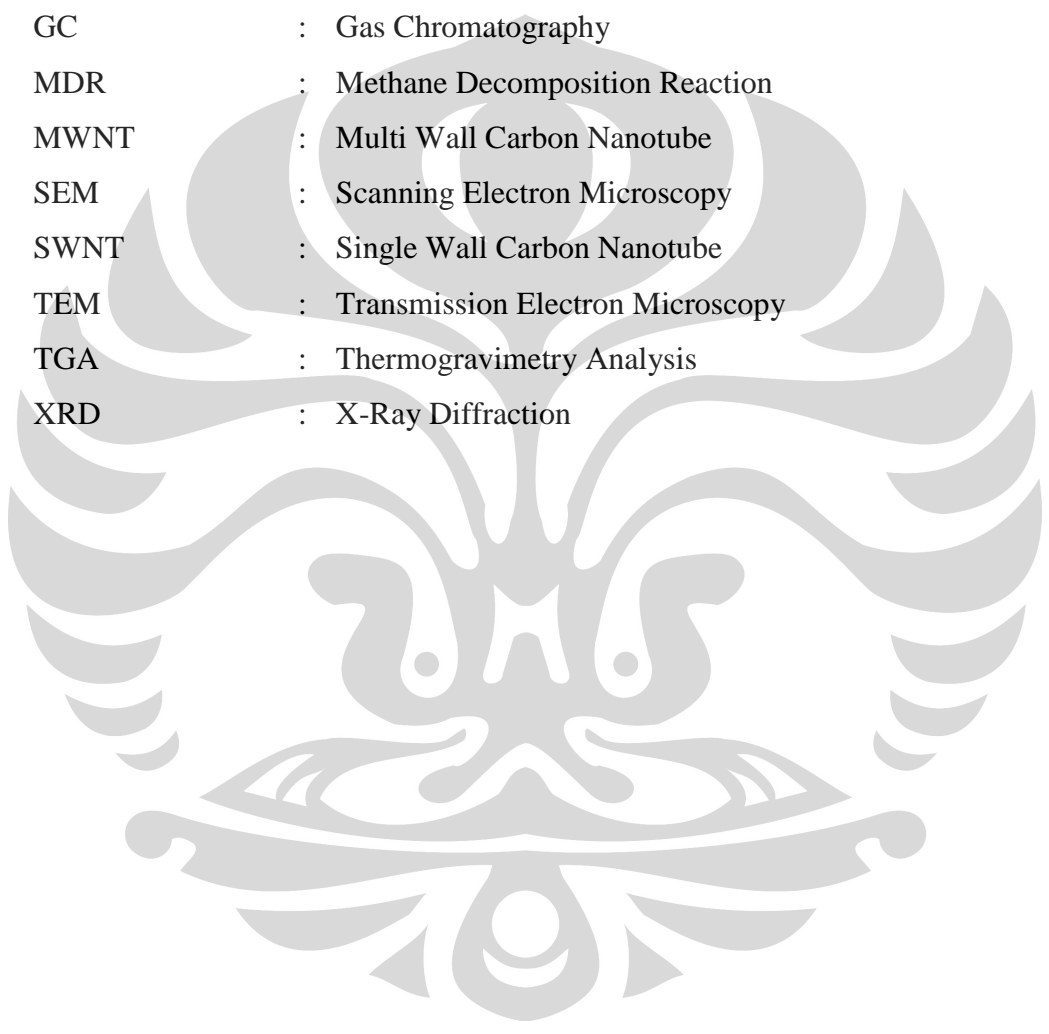
DAFTAR LAMPIRAN

| | |
|--|----|
| Lampiran A. Perhitungan Kebutuhan Pelat..... | 64 |
| Lampiran B. Perhitungan Kebutuhan Katalis..... | 64 |
| Lampiran C. Karakterisasi XRF..... | 65 |
| Lampiran D. Kalibrasi GC..... | 67 |
| Lampiran E. Data Uji 20 Menit Reaksi..... | 75 |
| Lampiran F. Data Uji 355 Menit Reaksi..... | 77 |



DAFTAR SINGKATAN

| | |
|------|--|
| CNF | : Carbon Nano Fiber |
| CNT | : Carbon Nano Tube |
| CVD | : Chemical vapour deposition |
| EDS | : Electron Diffraction Spectrophotometer |
| GC | : Gas Chromatography |
| MDR | : Methane Decomposition Reaction |
| MWNT | : Multi Wall Carbon Nanotube |
| SEM | : Scanning Electron Microscopy |
| SWNT | : Single Wall Carbon Nanotube |
| TEM | : Transmission Electron Microscopy |
| TGA | : Thermogravimetry Analysis |
| XRD | : X-Ray Diffraction |



DAFTAR NOTASI

- E = Energi gelombang
 μ = Massa per satuan panjang dan medium yang dilewati
 v = Cepat rambat gelombang
 L = Ukuran kristal
 β = Lebar setengah tinggi *peak* tertinggi (rad)
 X = Konversi



BAB I

PENDAHULUAN

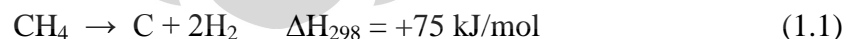
Pada bab ini akan dijelaskan mengenai latar belakang diperlukannya katalis terstruktur pelat, rumusan masalah yang ada, dan tujuan penelitian ini.

1.1 Latar Belakang

Perkembangan nanoteknologi secara global telah berkembang pesat sejak tahun 1997. Salah satu nanoteknologi yang paling berkembang adalah nanokarbon. Nanokarbon adalah material padat yang terdiri atas ikatan rantai karbon berbentuk bulat maupun pipa dan memiliki ukuran kecil yaitu dalam skala nanometer. Nanokarbon dapat diperoleh melalui beberapa cara yaitu *arc discharge*, penguapan *graphite*, *laser ablation*, perengkahan langsung metana atau dengan teknologi plasma (Ermakova, 2002).

Karbon *nanotube* adalah nanokarbon yang paling banyak diteliti dan dikembangkan dari semua jenis karbon yang dihasilkan. Hal ini dikarenakan struktur dan sifat fisiknya yang unik dan dapat digunakan sebagai penyimpan hidrogen, *nanoscale transistor*, *flat-panel display*, superkapasitor, *nanoprobes*, sensor (Daenan, 2003), dan katalis. Sifatnya yang unik, biaya produksi yang mahal, dan keberagaman fungsi yang dimiliki oleh karbon *nanotube*, menyebabkan harga karbon *nanotube* saat ini masih cukup tinggi yaitu 700 US\$/gram.

Salah satu cara untuk memperoleh karbon *nanotube* adalah dengan reaksi dekomposisi katalitik metana. Reaksi ini akan menghasilkan hidrogen dan karbon dengan reaksi: (Grujicic, 2002)



Hidrogen diharapkan akan memainkan peran yang sangat vital sebagai bahan bakar masa depan yang ramah lingkungan karena hasil pembakarannya tidak menghasilkan gas yang bersifat polutan. Pada sektor energi, hidrogen terutama digunakan sebagai sel bahan bakar (*fuel cell*) yang akan menggantikan pembangkit tenaga listrik dengan siklus termodinamika. Disamping itu, hidrogen

telah banyak dipakai sebagai bahan baku untuk industri-industri kimia, pengilangan minyak, dan makanan dalam jumlah besar.

Masalah yang timbul pada proses reaksi katalitik dekomposisi metana adalah deaktivasi katalis yang terjadi karena pembentukan karbon pada permukaan katalis. Selain itu, pada penelitian yang dilakukan oleh (Song, 2005) terjadi deaktivasi katalis akibat tingkat *pressure drop* yang tinggi. *Pressure drop* yang tinggi menyebabkan aliran keluar dari reaktor sangat kecil dan sisa-sisa katalis yang masih aktif pun tidak dapat bereaksi lagi. Untuk mengatasi masalah ini Widodo, 2005 menggunakan reaktor dengan diameter lebih besar. Penambahan diameter dua kali lipat ini menyebabkan kenaikan *lifetime* katalis tiga kali lipat. Hal ini terjadi karena reaktor dengan diameter lebih kecil akan lebih mudah terhalangi aliran keluarnya oleh deposit karbon dan terjadi *pressure drop*.

Katalis yang digunakan pada reaksi dekomposisi metana ini adalah nikel. Akan tetapi, katalis nikel ini mudah terdeaktivasi dan terjadi sintering (Ermakova,2002; Purwanto, 2005a,b dan Muharam, 2007 a,b). Berdasarkan hasil penelitian tersebut diperlihatkan bahwa katalis multimetal Ni-Cu-Al merupakan katalis yang paling baik ditinjau dari kualitas produk karbon *nanotube* maupun yield produk hidrogen serta *life time*. Promotor Cu mempunyai peran sebagai pencegah *sintering* dikarenakan partikel Cu akan menyisip diantara partikel Ni dan promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) sehingga mencegah terjadinya sintering. Pada usulan penelitian ini digunakan katalis Ni-Cu-Alumina.

Jenis reaktor yang umumnya digunakan pada reaksi dekomposisi katalitik metana adalah *fixed bed reactor*. Namun, *fixed bed reactor* lebih mudah digunakan bila katalisnya memiliki *lifetime* yang lama. Dalam beberapa proses, aktivitas katalis dapat menurun dengan cepat akibat *sintering*, racun katalis, dan deposit karbon. Pada *fixed bed reactor* ini juga menimbulkan kenaikan *pressure drop* (Purwanto,2005). Jika masalah ini terjadi, maka katalis harus diganti lebih sering untuk diregenerasi.

Beberapa penelitian telah dilakukan untuk merancang reaktor dengan kinerja yang lebih baik dalam reaksi dekomposisi katalitik metana, diantaranya adalah penelitian yang dilakukan oleh Nazim Muradov dan Qian Weizhong.

Muradov merancang dua jenis reaktor, yaitu *spouted bed reactor* dan *fluidized bed reactor*, sedangkan Qian Weizhong merancang jenis *two-stage fluidized bed* dalam memproduksi hidrogen dan karbon *nanotubes* dari dekomposisi katalitik metana.

Kelemahan penggunaan *spouted bed reaktor* adalah pencampuran katalis tidak homogen sehingga konversi metana yang dihasilkan sangat kecil, 7% (Muradov, 2001, Wang, 2002, Weizhong, 2004 dan Morancais, 2007). Kelemahan reaktor jenis *fluidized bed* memberikan konversi metana yang rendah yaitu < 40%. Hal ini dikarenakan waktu tinggal reaktan yang singkat sehingga kemurnian hidrogen rendah dan sulit mengontrol laju alir umpan dikarenakan perubahan ukuran partikel katalis selama reaksi, terjadi aglomerasi dan *sticking* dari partikel-partikel nano karbon.

Dalam rangka mencari solusi permasalahan jenis reaktor diatas, tahun 2007 lalu Muharam dan Purwanto telah memulai riset menggunakan reaktor dengan katalis terstruktur gauze untuk reaksi dekomposisi metana. Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan hingga 1400 menit (24 jam) untuk reaktor mikro dengan penurunan laju alir yang relatif kecil sekitar 10% sehingga dapat disimpulkan reaktor katalis terstruktur dapat mengatasi permasalahan penyumbatan (*pressure drop*) pada reaktor unggun diam, ketinggian *wire mesh (gauze)* dan laju alir umpan dapat diatur dengan mudah tanpa mempengaruhi hidrodinamika sehingga dapat menambah waktu tinggal reaktan yang pada akhirnya meningkatkan konversi. Kualitas CNT yang dihasilkan oleh reaktor dengan katalis terstruktur ini cukup baik yaitu berdiameter 30-50 nm dengan ketebalan dinding 10-20 nm dan kemurnian hidrogen mencapai lebih dari 99%.

Penelitian juga dilakukan dengan menggunakan reaktor katalis terstruktur *gauze* dengan diameter 4,5 cm dan panjang 30 cm dan didapatkan bahwa reaktor katalis terstruktur dapat mencegah terjadinya *pressure drop* dan katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai lebih dari 33 jam dengan konversi metana tertinggi yang didapatkan pada suhu 700°C adalah 94.87%, produk kemurnian hidrogen yang dihasilkan mencapai 95.14%, dan didapatkan hasil 200g C/g katalis.(Yulianti, 2007). Berdasarkan data konversi metana dan *yield* karbon yang dihasilkan, maka

hasil yang didapatkan dengan reaktor katalis terstruktur *gauze* cukup baik. Akan tetapi, kualitas nanokarbon yang dihasilkan oleh reaktor *gauze* ini tidak well-aligned. Oleh karena itu, untuk memperbaiki kualitas nanokarbon yang dihasilkan maka dilakukan penelitian dengan menggunakan katalis terstruktur pelat. Pada penelitian yang dilakukan Huan Wang ,2007 didapatkan pertumbuhan CNT yang well-aligned dengan menggunakan substrat pelat datar

Pada katalis terstruktur pelat yang memiliki permukaan yang datar diharapkan pertumbuhan nanokarbon pada substrat lebih rapih sehingga kualitas nanokarbon yang dihasilkan lebih baik. Selain itu, pada katalis terstruktur *gauze* seringkali dijumpai gumpalan katalis yang terbentuk pada bagian siku *wire*. Hal ini mengakibatkan diameter karbon yang dihasilkan akan semakin besar. Untuk mengatasi masalah ini, maka dilakukan pelapisan katalis pada substrat pelat untuk menghindari terbentuknya gumpalan katalis pada substrat.

1.2 Rumusan Masalah

Perumusan masalah pada penelitian ini adalah:

Bagaimana merancang reaktor dan internal reaktor katalis terstruktur pelat untuk reaksi dekomposisi katalitik metana.

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan utama dari penelitian ini adalah:

- Merndapatkan konfigurasi internal reaktor katalis terstruktur pelat.
- Merndapatkan reaktor katalis terstruktur pelat sejajar untuk reaksi dekomposisi katalitik metana

1.4 Batasan Masalah

Batasan pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Reaktor yang digunakan pada penelitian ini adalah reaktor dengan katalis terstruktur pelat sejajar.
2. Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni-Cu-Al.
3. Preparasi katalis dilakukan dengan metode *sol-gel*. Pelapisan katalis pada pelat adalah dengan metode *dip-coating*.

4. Temperatur reaksi yang digunakan adalah 700 °C dan menggunakan tekanan atmosferik (1atm). Gas yang digunakan selama pengujian adalah gas metana.
5. Pengujian dilakukan untuk menguji aktifitas dan stabilitas katalis.

1.5 Sistematika Penelitian

BAB I Pendahuluan

Berisi latar belakang, rumusan masalah, tujuan penulisan, batasan masalah, dan sistematika penulisan.

BAB II Tinjauan Pustaka

Berisi tinjauan pustaka yang menjadi dasar penelitian yang meliputi pengertian tentang reaksi dekomposisi metana, produk reaksi dekomposisi metana yang antara lain: gas hidrogen dan karbon nanotube, metode sintesis karbon nanotube, aplikasi karbon nanotube, jenis-jenis reaktor untuk produksi karbon *nanotube*, dan mekanisme pertumbuhan karbon *nanotube*.

BAB III Metode Penelitian

Berisi penjelasan mengenai prosedur penelitian secara umum, termasuk di dalamnya preparasi katalis, uji aktivitas dan stabilitas katalis, karakterisasi terhadap katalis dan produk nanokarbon.

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

Berisi hasil perancangan reaktor, pelapisan katalis dengan metode dip-coating, analisis kuantitatif pengujian reaktor untuk uji stabilitas dan uji aktivitas katalis.

BAB V KESIMPULAN DAN SARAN

Berisi kesimpulan dari hasil penelitian serta saran untuk penelitian selanjutnya.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

Pada tinjauan pustaka, akan dibahas mengenai teori-teori dasar tentang reaksi dekomposisi katalitik metana, karbon *nanotube*, sintesis karbon *nanotube*, aplikasinya, dan optimasi proses untuk meningkatkan kualitas karbon *nanotube*.

2.1 Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Reaksi dekomposisi katalitik metana adalah reaksi memutuskan ikatan C-H dari metana menjadi komponen yang lebih sederhana yaitu hidrogen dan karbon dengan reaksi (Grujicic, 2002):



Nilai energi bebas Gibbs (ΔG_r°) untuk reaksi perengkahan metana berkurang dengan kenaikan temperatur dari positif menuju negatif. Pada temperatur yang lebih besar dari 800 K, harga ΔG_r° menjadi negatif (Stenfield, 1995). Nilai ΔH_r° yang positif pada Persamaan 2.1 menandakan reaksi bersifat endotermis. Akan tetapi, suhu yang tinggi memerlukan energi yang tinggi pula sehingga kurang efisien. Oleh karena itu, diperlukan katalis untuk menurunkan energi aktivasi dalam suatu reaksi kimia tersebut.

Perkembangan penelitian dekomposisi katalitik metana secara umum dapat dibagi menjadi 2 jenis, yaitu:

1. Dekomposisi metana secara termal (*thermal cracking*) yang menghasilkan hidrogen dan karbon hitam.
2. Dekomposisi katalitik metana dengan menggunakan katalis logam transisi (Fe, Co, dan Ni) yang menghasilkan jenis material karbon yang memiliki ukuran partikel nanometer yang biasa disebut dengan nanokarbon.

Dekomposisi metana secara termal telah dilakukan untuk menghasilkan hidrogen dan karbon hitam (*Thermal Black Process*). Proses ini berlangsung semi-kontinu dengan menggunakan dua reaktor bersuhu tinggi 1400°C. Dalam perkembangannya dekomposisi berlangsung pada suhu rendah sekitar 900 °C dengan menggunakan katalis logam seperti Sn atau Cu.

Tantangan utama proses ini adalah deaktivasi katalis yang disebabkan tertutupnya permukaan katalis oleh karbon. Sehingga pengembangan penelitian dengan bermacam-macam katalis seperti Ni, Fe, Co, Pd dan lain-lain dikembangkan dalam rangka menurunkan suhu dekomposisi metana dan pemecahan deaktivasi katalis.

2.2 Produk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

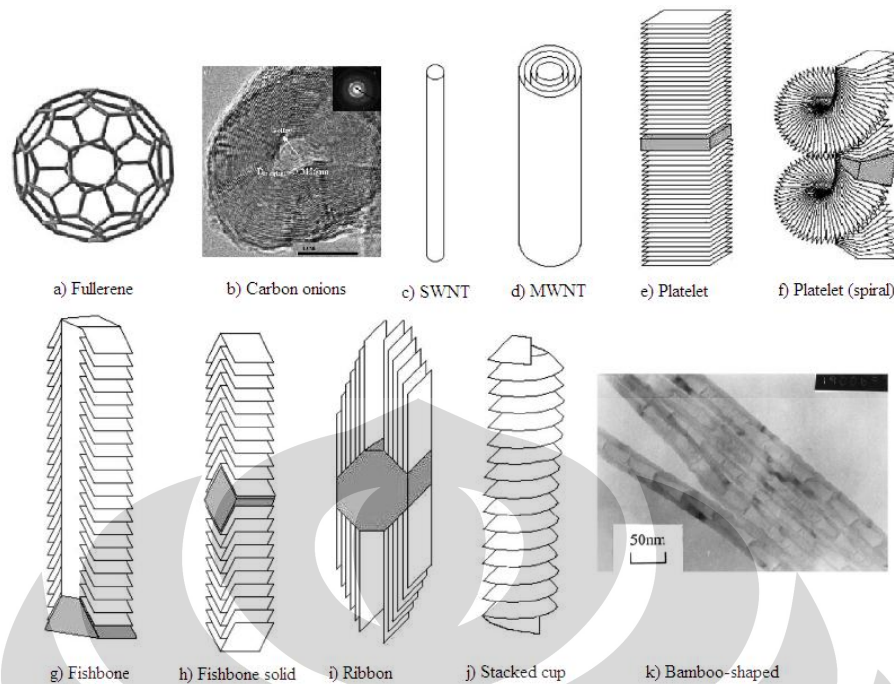
2.2.1 Nanokarbon

Nanokarbon adalah material karbon yang diproduksi dengan ukuran dan struktur berskala nanometer. Material nano karbon yang paling dikenal adalah intan dan grafit. Intan memiliki karbon dengan empat ikatan sp^3 membentuk susunan tiga dimensi yang simetris dan tersusun rapat. Sedangkan grafit memiliki karbon dengan tiga ikatan sp^2 membentuk susunan dua dimensi berupa lembaran tersusun dari ikatan heksagonal atom-atom karbon sp^3 (Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M, 2001).

Selain jenis bentuk alotropik karbon di atas, ditemui juga bentuk alotropik karbon berukuran nanometer, yaitu:

1. *Fullerene* atau *buckminsterfullerene* atau *bucky ball*, yaitu lembaran grafit yang membentuk bola (Gambar (2.1a)) yang terdiri dari karbon-karbon sp^2 dan sp^3 . Contohnya adalah C_{60} , yaitu *fullerene* yang terdiri dari 12 cincin pentana dan 20 cincin heksana. (Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M, 2001).
2. *Carbon onions* terdiri yaitu lapisan grafit yang konsentrik seperti bola (*quasi-spherical*) dan seperti pada (Gambar (2.1b) (He, 2006).
3. Karbon nanofilamen yaitu nanokarbon berbentuk filamen. Secara umum, karbon nanofilamen terdiri dari karbon nanofiber (CNF) dan karbon nanotubes (CNT). Bentuk-bentuk nanofilamen secara umum adalah:

- a. Karbon *nanotubes* (CNT) berbentuk pipa yaitu lapisan grafit yang berbentuk silinder (pipa). CNT dapat berupa *single-walled carbon nanotubes* (SWNT) yang hanya terdiri satu lapis lembaran grafit seperti pada Gambar (2.1c), maupun *multi-walled carbon nanotubes* (MWNT) yang terdiri dari berlapis-lapis lembaran grafit yang konsentrik seperti pada Gambar (2.1d). SWNT dan MWNT akan dibahas lebih lanjut pada subbab 2.2.2.1.
- b. *Platelet carbon nanofiber* yaitu lapisan grafit kecil yang tegak lurus dengan arah aksial *fiber* seperti pada Gambar (2.1e). *Nanofiber* ini harus memiliki hidrogen atau atom lainnya dalam jumlah tak terbatas untuk stabilisasi piringan (*plate*). *Platelet carbon nanofiber* dapat pula berbentuk spiral (Gambar (2.1f)). Biasanya, partikel padatan berada pada bagian tengah *fiber*. (Gullon, 2006).
- c. *Fishbone carbon nanofiber* yaitu lapisan grafit yang memiliki kemiringan dari sumbu aksialnya. *Fishbone carbon nanofiber* membutuhkan hidrogen untuk menstabilkan bagian ujungnya. *Fishbone carbon nanofibers* dapat berinti kosong (*hollow core*) maupun berinti padatan (*solid core*) seperti pada Gambar 2.1(g) dan (h) (Gullon, 2006).
- d. *Ribbon carbon nanofibers* yaitu lapisan grafit yang lurus dan tidak tergulung yang posisinya sejajar dengan sumbu aksial *fiber*. (Gambar (2.1i)) (Gullon, 2006).
- e. *Stacked cup carbon nanofibers* yaitu lapisan spiral grafit yang kontinu sepanjang sumbu aksial *fiber* (Gambar (2.1j)) (Gullon, 2006).
- f. *Bamboo-shaped carbon filament* yaitu nanokarbon yang berbentuk seperti bambu, dimana banyak terdapat ruang kosong dan *joint-joint* seperti yang terlihat pada Gambar (2.1k).



Gambar 2.1. Beragam struktur nanokarbon [Rao, 2001, He, 2006, Gullon, 2006]

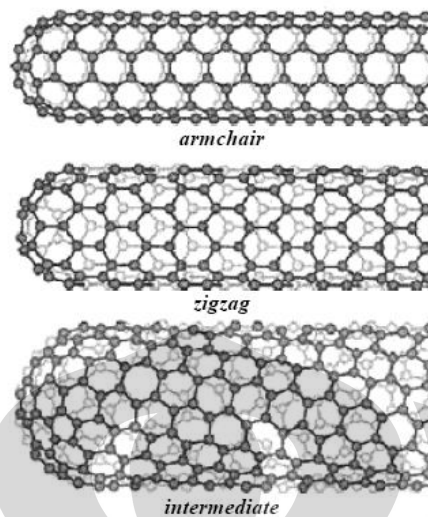
2.2.2. Karbon Nanotube

2.2.2.1. Single-walled dan Multiwalled Carbon Nanotubes

Struktur *CNT* pertama kali ditemukan oleh Sumio Iijima dari NEC Laboratories di Jepang. Berdasarkan jumlah cangkang (*shell*) yang dibentuknya, ada dua golongan utama *CNT*: *single walled carbon nanotubes (SWCNT)* yang hanya membentuk satu cangkang dan *multiwalled nanotubes (MWCNT)* yang membentuk lebih dari satu cangkang.

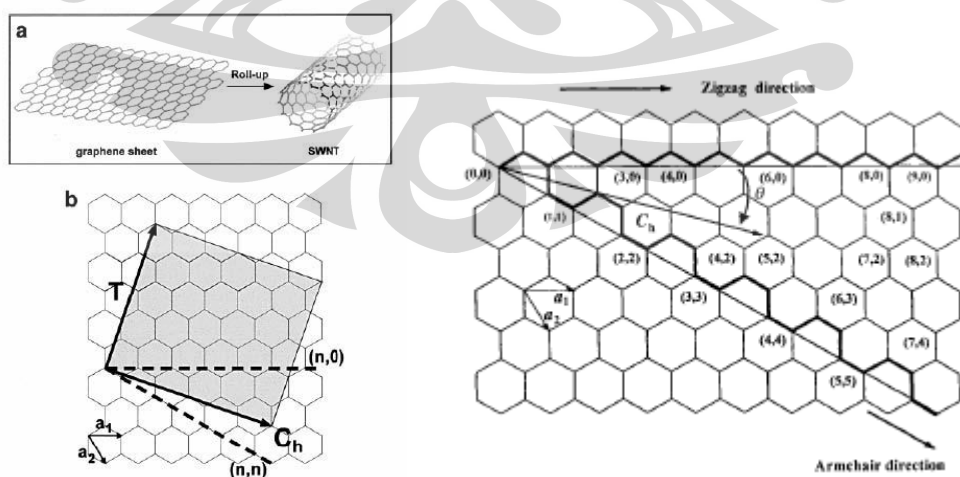
SWCNT terdiri dari dua bagian terpisah dengan sifat fisik dan kimia yang berbeda. Bagian pertama adalah bagian dinding tabung dan kedua adalah bagian penutup tabung. Karbon *nanotube* ini memiliki diameter yang bervariasi antara 0,4 nm-2,5 nm dan panjang beberapa micrometer sampai beberapa milimeter. Struktur bagian penutup tabung serupa dengan *fullerene* di mana atom karbon membentuk ikatan heksagonal dan pentagonal pada bagian penutup (*end caps*). Kombinasi dari bentuk pentagon dan heksagon ini menghasilkan bentuk penutup tabung setengah bola yang stabil. Menurut teori Euler, setiap penutup harus memiliki 6 pentagon yang terisolasi satu sama lain agar diperoleh energi permukaan yang minimal dan struktur yang stabil. Karbon *nanotube* jenis SWNT memiliki 3 jenis bentuk struktur yang berbeda antara lain: *armchair type*, *zig-zag*

type, dan *intermediate/Chiral/helicaltype*(Gambar 2.2).



Gambar 2.2 Struktur CNT(Rao, C.N., 2001)

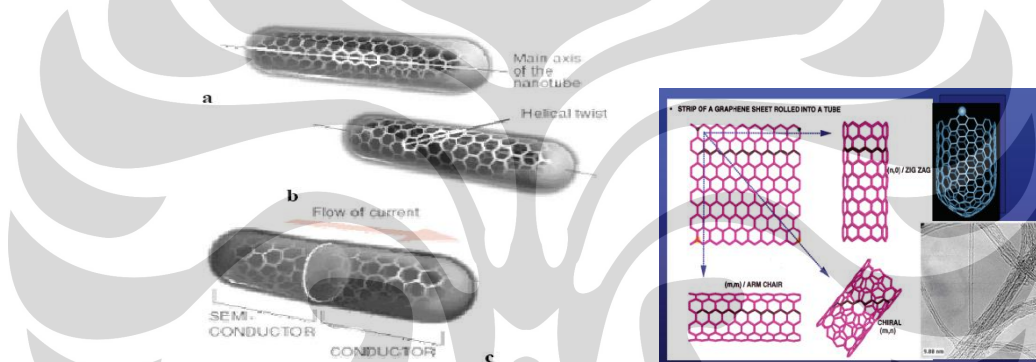
Bagian lain pada CNT adalah dinding tabung berupa silinder *CNT* sering digambarkan sebagai lembaran-lembaran *graphene* (bagian dari struktur grafit yang berbentuk lembaran) dengan ukuran tertentu yang digulung ke arah tertentu pula. Arah dari penggulungan lembaran ini akan menentukan arah ikatan heksagonal pada CNT, yang kemudian sangat menentukan sifat listrik CNT. Untuk mengkarakterisasi sebuah CNT dengan geometri tertentu, diberikan parameter bilangan bulat (n, m) , yang disebut vektor chiral (C_h).



Gambar 2.3 Lembaran *graphene* digulung membentuk *CNT*

Vektor kiral ini mempengaruhi karakteristik CNT seperti kekuatan mekanik, konduktivitas elektrik dan sifat optiknya sehingga molekul *CNT* sangat kuat, ulet, fleksibel, tidak mudah patah. Pada tekanan tinggi, molekul-molekul *CNT* dapat bergabung membentuk struktur seperti tali yang sangat kuat disebut *nanorope*.

MWCNT merupakan SWCNT yang tersusun secara aksial konsentrik. Panjang dan struktur MWCNT berbeda dengan SWCNT dan karakteristiknya pun berbeda. Jarak antara satu SWCNT dengan yang lainnya adalah sekitar 0,36 nm. Lapisan grafit pada MWCNT bervariasi jumlahnya dari dua hingga beberapa puluh lapisan, sehingga memungkinkan diameternya mencapai 100nm. Pada *MWCNT*, meskipun terjadi interaksi antar cangkang yang mempengaruhi sifat listriknya, tetapi biasanya pengaruhnya dapat diabaikan.



Gambar 2.4 (a) Dua jenis *CNT* yang berbeda sifatnya (a dan b) digabungkan membentuk struktur c. (b) Armchair bersifat logam-konduktor dan zigzag-chiral/intermediate bersifat semi konduktor.

MWCNT lebih mudah diproduksi dan biaya produksinya lebih rendah. Biaya produksi SWCNT lebih tinggi karena diperlukan biaya tambahan untuk pemurniannya. SWCNT dan MWCNT akan memiliki kegunaan yang berbeda sesuai dengan sifat-sifatnya. Di masa yang akan datang, MWCNT mungkin akan menjadi material yang dipilih untuk membangun struktur yang kuat (*structural reinforcement*), karena harganya murah dan kemurniannya tidak menjadi masalah. SWCNT mungkin akan lebih banyak digunakan untuk membangun sirkuit komputer (Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M, 2001).

2.3. Sintesis Karbon *Nanotube*

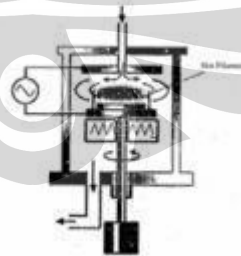
Ada beberapa cara yang dapat dilakukan untuk mensintesis karbon nano tube. *Single-walled* karbon nanotubes dan *multi-walled* carbon nanotubes dapat dihasilkan dengan metode preaparasi yang berbeda-beda. Adapun beberapa cara yang dapat dilakukan untuk mensintesis karbon nanotubes, yaitu :

❖ *Chemical vapor deposition*

Metode *chemical vapor deposition* menggunakan sumber karbon dalam fasa gas dan plasma untuk mentransfer energi kepada karbon molekul gas. Pada umumnya, sumber karbon yang digunakan adalah gas metana, karbon monoksida, dan asetilen. Energi yang diberikan akan merengkahkan molekul menjadi atom karbon. Karbon kemudian akan berdifusi melalui substrat yang dipanaskan dan dilapisi oleh katalis kemudian terjepit di dalamnya. Kontrol dari posisi dan penjajaran dari suatu karbon dapat dilakukan dengan baik jika menggunakan metode ini. Pertumbuhan karbon yang dihasilkan ditentukan oleh jenis katalis yang digunakan.

❖ *Plasma-enhanced chemical vapor deposition*

Metode ini hampir sama *glow discharge* dalam suatu ruangan atau reaksi pada *furnace* melalui frekuensi dan tegangan tinggi yang diaplikasikan pada kedua elektrodanya. Karbon yang mengandung gas, seperti C_2H_2 , CH_4 , C_2H_4 , C_2H_6 , atau CO dialirkan ke dalam ruangan pada saat terjadinya *discharge*.

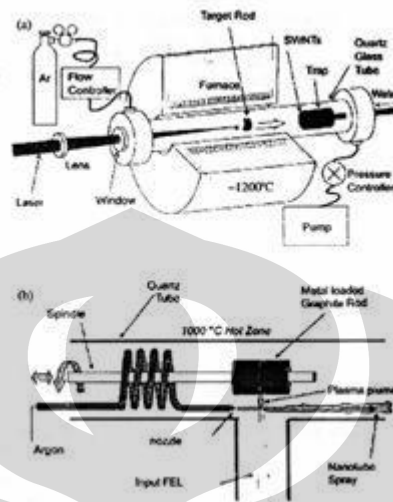


Gambar 2.5 Plasma CVD

❖ *Laser vaporization*

Pada metode ini digunakan laser secara kontinu untuk menguapkan grafit yang ditargetkan dalam oven pada suhu $1200^{\circ}C$. Oven diisi dengan gas helium atau argon untuk menjaga tekanan pada 500 torr. Uap panas

terbentuk, kemudian berekspansi sehingga terjadi penurunan suhu dengan cepat. Pada saat ini, molekul karbon dan atom terkondensasi dengan cepat.



Gambar 2.6. Smalley-type laser ablation (a), Ultrafast-pulsed laser ablation(b)

❖ Dekomposisi Katalitik Metana

Reaksi dekomposisi metana merupakan proses sintesis karbon nanotube yang paling ekonomis di antara metode lainnya. Pada metode ini, material yang digunakan sebagai bahan baku harganya tidak terlampaui tinggi dan proses pemurnian produknya cukup sederhana karena hanya memisahkan karbon nanotube yang terbentuk dari logam katalis tempat nanotube tersebut menempel. Sedangkan pada metode-metode sebelumnya diperlukan proses pemurnian yang kompleks, karena struktur grafit dan karbon nanotube yang terbentuk memiliki kesamaan sifat sehingga seringkali produk nanotube yang dihasilkan ikut terbuang dengan grafit.

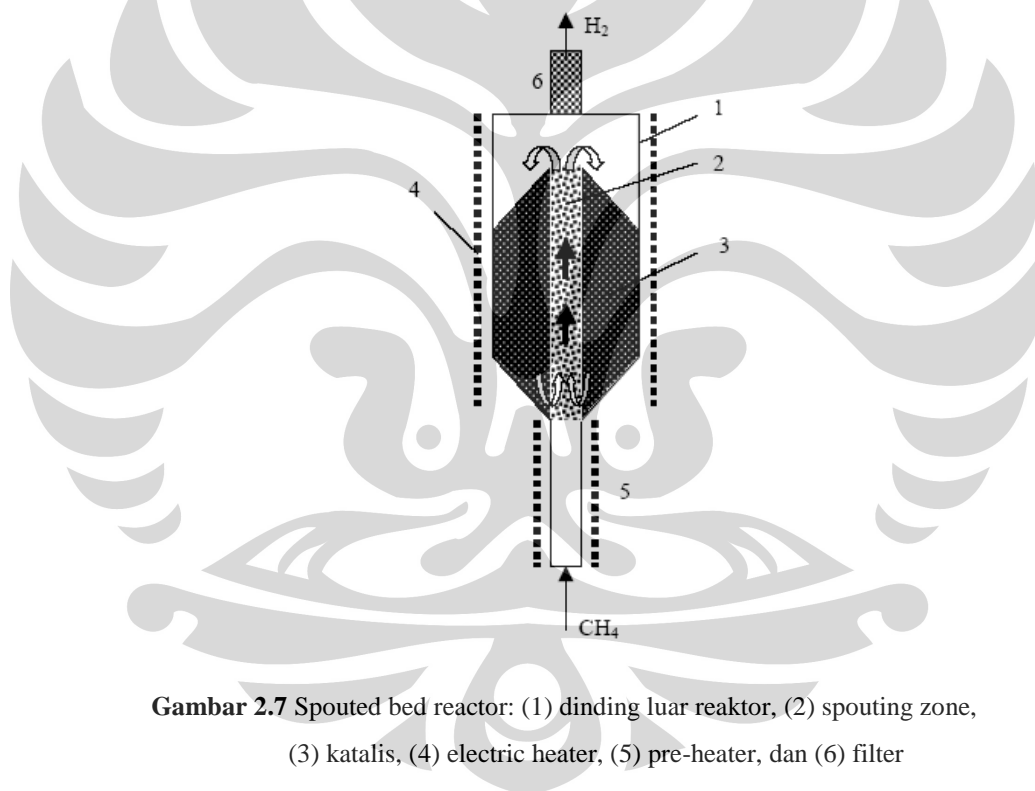
2.4. Perancangan Reaktor

2.4.1. Fixed Bed Reactor

Jenis reaktor yang umumnya digunakan untuk reaksi dekomposisi metana skala besar adalah Reaktor Unggun Diam (*fixed bed reactor*). Reaktor Unggun Diam lebih mudah digunakan bila katalisnya memiliki *lifetime* yang lama. Reaktor ini mengalami penyumbatan akibat deposisi karbon pada katalis yang menyebabkan kenaikan jatuh tekanan (*pressure drop*) (Purwanto, 2005b). *Spouted*

bed Reactor digunakan Muradov, 2001, dengan mengalirkan metana dari dasar reaktor dengan kecepatan yang tinggi sehingga menimbulkan *spouting zone* di tengah reaktor.

Sebagian katalis akan terbawa aliran metana di sepanjang *spouting zone* dan akan tersembur keluar di bagian atas *spouting zone*. Penetapan kecepatan superfisial gas 2 cm/s dan rasio tinggi terhadap diameter reaktor sebesar 5-6 dilakukan untuk memperoleh fluidisasi katalis yang homogen. Akan tetapi, penetapan ini masih menghasilkan pencampuran katalis yang tidak merata (homogen) sehingga konversi metana yang dihasilkan sangat kecil yaitu 7 % akibat singkatnya kontak antara metana dengan katalis. *Spouted bed reactor* yang digunakan oleh Muradov dapat dilihat pada Gambar 2.7.



Gambar 2.7 Spouted bed reactor: (1) dinding luar reaktor, (2) spouting zone, (3) katalis, (4) electric heater, (5) pre-heater, dan (6) filter

2.4.2 Fluidized Bed Reactor

Muradov, 2001 menggunakan jenis reaktor *Fluidized Bed Reactor* (FBR) sebagai alternatif untuk operasi skala besar menggantikan reaktor unggun diam yang mempunyai perbedaan tekanan jatuh yang tinggi akibat deposit karbon. Metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tertentu sehingga

menyebabkan katalis terfluidisasi sehingga memberikan kenaikan perpindahan panas dan perpindahan massa dari partikel ke gas.

Selain menggunakan SBR, Muradov pun menggunakan *fluidized bed reactor* (FBR). FBR sudah digunakan secara luas dalam industri kimia, metalurgi, dan perminyakan. Metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tertentu sehingga menyebabkan katalis terfluidisasi. Kecepatan aliran minimum metana agar terjadi fluidisasi dihitung dengan persamaan:

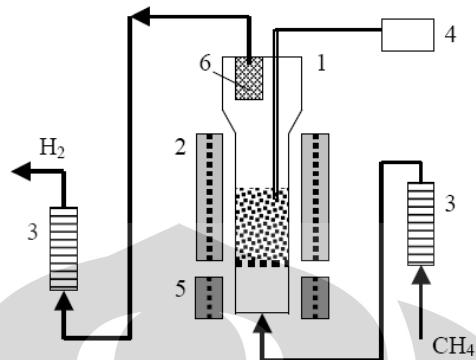
$$G = \frac{0.005 d_p^2 \varepsilon^3 (\rho_p - \rho_f) \rho_f g}{\psi^2 (1 - \varepsilon) \mu} \quad (2.2)$$

dimana: G = kecepatan aliran yang dibutuhkan agar terjadi fluidisasi
 d_p = diameter partikel
 ε = *fraction voids* (kekosongan)
 ρ_p = densitas partikel
 ρ_f = densitas metana
 g = percepatan gravitasi
 ψ = *shape factor*
 μ = viskositas

Selama fluidisasi akan terjadi kontak antara katalis dengan metana selama waktu tertentu yang lamanya dapat dikontrol dengan menentukan rasio antara kecepatan umpan dengan massa katalis. Berdasarkan hasil penelitian ini, setelah 1,5-2 jam laju dekomposisi metana mulai menurun karena berkurangnya permukaan inti katalis akibat deposit karbon. Sistem reaktor yang digunakan oleh Muradov dapat dilihat pada Gambar 2.8.

FBR sesuai untuk reaksi kontinu dan mampu mengikis partikel karbon dari reaktor sehingga mencegah terjadinya deposit karbon tetapi konversi metana masih rendah < 40 % akibat waktu tinggal reaktan yang singkat sehingga hidrogen yang diperoleh tidak murni (Muradov, 2001). Pengontrolan laju alir umpan juga sulit karena perubahan ukuran partikel katalis selama reaksi dan terjadi aglomerasi dan *sticking* dari partikel-partikel nano. Namun FBR yang digunakan hanya mampu memproduksi CNT skala besar menggunakan kandungan hidrogen yang

tinggi dan bukan metana dengan metode sintesis CVD. Morancais, 2007 menggunakan FBR untuk produksi CNT skala besar dari Dekomposisi etilen.

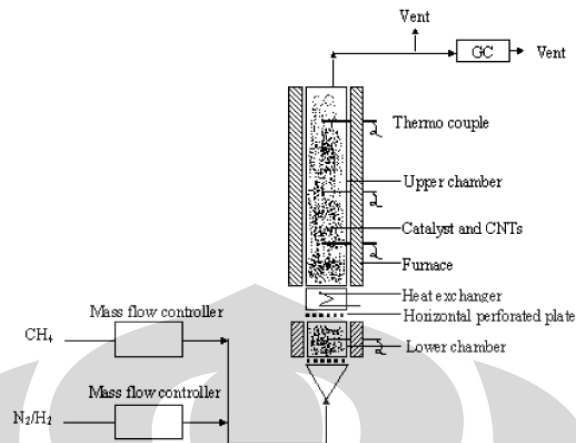


Gambar 2.8 Sistem reaktor: (1) fluidized bed reactor, (2) electric heater, (3) flow meter, (4) suhu controller, (5) pre-heater, dan (6) filter

Dekomposisi katalitik pada metana adalah cara yang relatif singkat untuk memproduksi hidrogen dan karbon tanpa menghasilkan karbon oksida. Untuk memutuskan ikatan kuat C-H dari metana yang merupakan reaksi endotermis, diperlukan suhu tinggi dan katalis dengan aktivitas tinggi. Namun, karbon yang dihasilkan dalam jumlah besar dan pada suhu tinggi akan merusak struktur katalis dan menyebabkan deaktivasi katalis. Untuk menjaga kesetimbangan antara produksi dan difusi karbon pada operasi yang berlangsung kontinu, maka diperlukan suhu rendah. Oleh karena itu, diperlukan reaktor dengan suhu tinggi dan rendah. Hal inilah yang membuat Weizhong, 2004 dan Qian, 2002 menggunakan *two-stage fluidized bed reactor* untuk reaksi dekomposisi katalitik metana.

Penelitian Weizhong dan Qian, 2002, menggunakan *two-stage fluidized bed reactor* (Gambar 2.9) yang memungkinkan suhu berbeda untuk *stage* yang berbeda pada dekomposisi metana dalam menjaga kesetimbangan antara produksi dan difusi karbon saat operasi kontinu memerlukan reaktor bersuhu rendah dan untuk memutus ikatan kuat C-H dari metana yang reaksinya endotermis memerlukan reaktor bersuhu tinggi. FBR 2 tahap dilakukan dengan menggunakan *lower stage* menggunakan suhu rendah yaitu 773 K, sedangkan *upper stage* menggunakan suhu tinggi yaitu dari 773 K sampai 1123 K. Hal ini menyebabkan katalis yang terfluidisasi dapat mendekomposisi metana dengan aktivitas tinggi

pada suhu tinggi dan karbon dapat berdifusi secara efektif untuk membentuk CNT pada daerah bersuhu rendah dan tinggi.

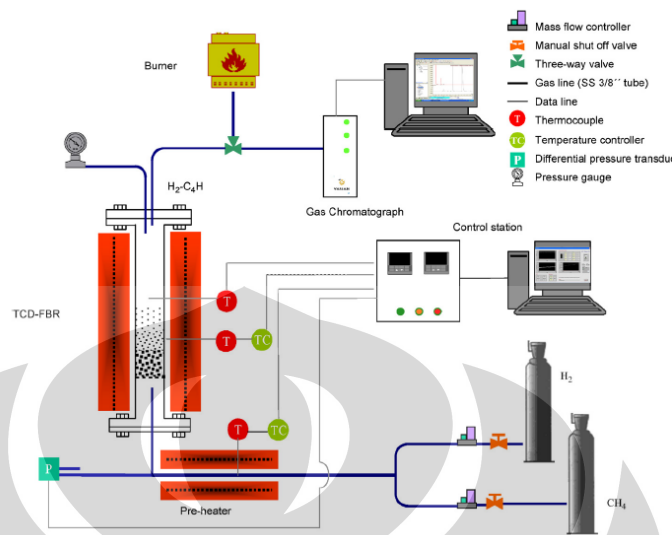


Gambar 2.9 Two-stage fluidized bed reactor

Pada *two-stage fluidized bed reactor*, usia katalis dapat diperpanjang pada suhu tinggi. Selain itu, konversi metana untuk waktu operasi yang lama dapat meningkat dari 20% pada 873 K menjadi 40% pada 1123 K, sehingga konsentrasi hidrogen pada produk pun tinggi. CNT yang dihasilkan dengan menggunakan reaktor ini pun memiliki mikrostruktur yang sempurna.

FBR skala pilot seperti pada Gambar 2.10 yang telah dilakukan semi kontinu dengan menggunakan katalis bubuk Ni/Cu/Al yang dipreparasi dengan metode co-presipitasi dan menghasilkan 60 liter per jam hidrogen dan 15 gram per jam CNT. Sistem FBR ini menyediakan aliran konstan dari padatan yang melewati zona reaksi, sehingga sistem ini sesuai untuk reaksi kontinu. Unggun partikel katalis dalam FBR ini berkelakuan sebagai bagian dari liquid yang tercampur dengan baik sehingga meningkatkan perpindahan massa dan perpindahan panas yang tinggi antara partikel dengan gas. Tetapi FBR ini mempunyai problem penyumbatan reaktor akibat deposisi karbon sehingga sering dilakukan 'shut down'. Pinilla, 2007 menggunakan reaktor FBR ini dengan katalis bubuk yang dipreparasi dengan metode co-presipitasi dan metode fusion serta memperbaiki reaktor semi kontinu ini menjadi reaktor kontinu dengan menggunakan Kanthal (logam alloy yang terbentuk dari lapisan oksida yang sangat stabil pada suhu tinggi) dan membagi reaktor menjadi 2 tahap dan

pengoperasian dilakukan dengan komputer. FBR diharapkan dapat menghasilkan hidrogen dan nanokarbon secara simultan.

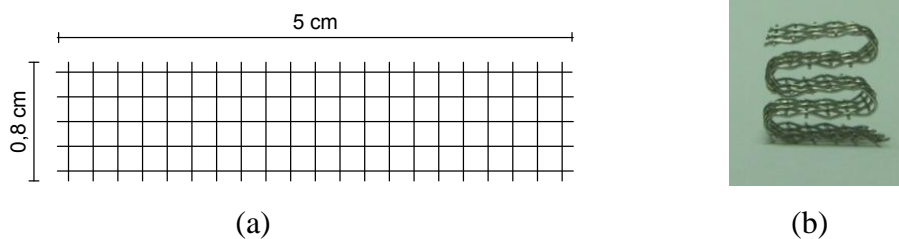


Gambar 2.10 Skema *Fluidized Bed Reactor* Semi Kontinu Skala Pilot

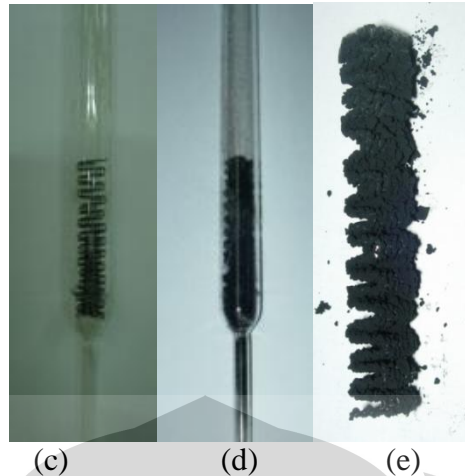
Hasil reaksi memperoleh yield hidrogen 65 % serta konversi metana 48 % tetapi hanya mampu menghasilkan karbon berupa filamen (*Carbon Nanofiber*) yang struktur dan sifatnya tidak seunggul karbon berbentuk nanotube dengan produksi 200 gram per jam. Kesulitan pengoperasian masih terasa karena kecepatan metana harus dijaga 2 x kecepatan fluidisasi minimum untuk mencegah terjadinya aglomerasi partikel katalis.

2.4.3 Reaktor Katalis Terstruktur

Muharam dan Widodo, 2007 telah melakukan riset menggunakan reaktor katalitik terstruktur (*wire mesh*) skala kecil (1 cm diameter) untuk reaksi dekomposisi metana, seperti terlihat pada Gambar 2.11 dan 2.12.



Gambar 2.11 Substrat anyaman kawat (gauze) baja sebelum (a) dan (b) setelah dibentuk



Gambar 2.12 Reaktor katalis terstruktur sebelum reaksi (c) dan (d, e) setelah reaksi

Selain itu dilakukan percobaan skala bench dengan diameter reaktor yang lebih besar yaitu 4 cm dan panjang 60 cm dengan kapasitas sekitar 0,15 kg per hari (Gambar 2.13 a dan b),

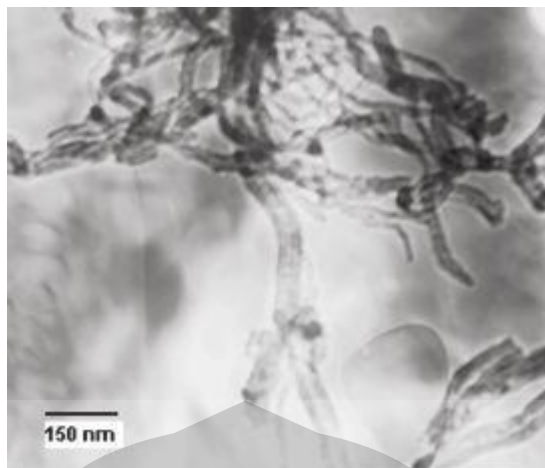


Gambar 2.13 (a) Katalis terstruktur sebelum reaksi



Gambar 2.13 (b). Katalis terstruktur setelah reaksi

Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai 1400 menit (24 jam) untuk reaktor mikro dengan penurunan laju alir yang relatif kecil sekitar 10% sehingga dapat disimpulkan reaktor katalis terstruktur dapat mengatasi permasalahan penyumbatan (*pressure drop*) pada reaktor unggun diam dan ketinggian *wire mesh (gauze)* dan laju alir umpan dapat diatur dengan mudah tanpa mempengaruhi hidrodinamika sehingga dapat menambah waktu tinggal reaktan yang pada akhirnya meningkatkan konversi.

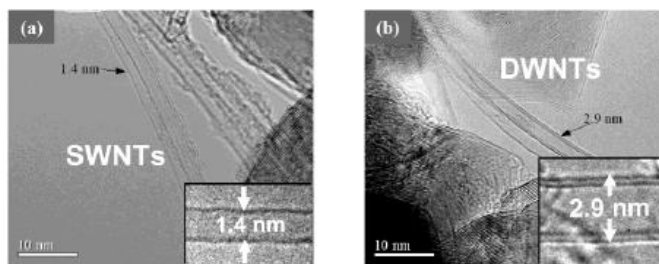


Gambar 2.14 Hasil SEM nanotube karbon

Kualitas CNT yang dihasilkan cukup baik dengan diameter 30-50 nm dan ketebalan dinding 10-20 nm (Gambar 2.14) dan kemurnian hidrogen mencapai lebih dari 99%. Untuk reaktor skala lab mampu beroperasi selama 33 jam dengan yield CNT sebesar 200 gr C/gr katalis dan kemurnian hidrogen 95%.

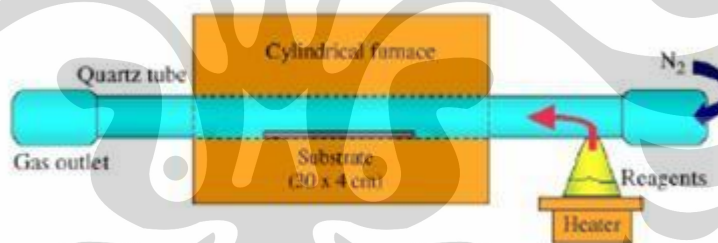
2.4.4. Reaktor CVD

Pada tahun 2002, Ruth Zhang melakukan penelitian mengenai pembentukan SWNT via *reduced-pressure CVD* dengan menggunakan gas metana dan katalis besi/ molibdenum dengan *support* nanopartikel alumina. Temperatur operasi yang digunakan adalah 700⁰C-900⁰C dan tekanan 100 Torr. Katalis yang digunakan adalah alumina yang diimpregnasi ke dalam campuran larutan garam $\text{Fe}(\text{SO}_4)_3/(\text{NH}_4)_4\text{MO}_7\text{O}_{24}/\text{H}_2\text{O}$ dengan perbandingan komposisi molar = 1: 0,17 : 16. Katalis tersebut disemprotkan pada lapisan Si dan kemudian dikeringkan dengan menggunakan oven pada suhu 80⁰C selama 10 menit. Berdasarkan karakterisasi dengan menggunakan TEM pada suhu 700⁰C, didapatkan hasil SWNT dengan diameter 1,4 atau 2,6 nm dan juga multi wall dengan diameter 2,8 nm atau 3,9 nm.



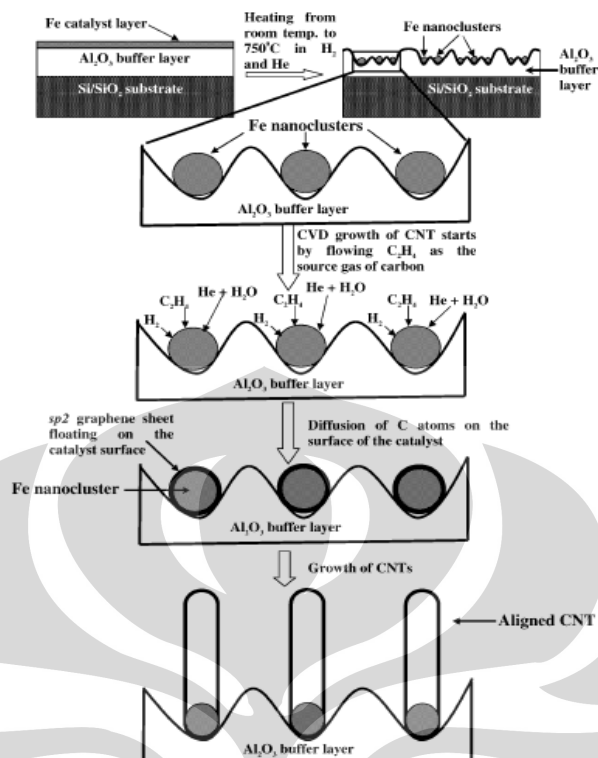
Gambar 2.15 Hasil TEM (a) Single-wall nanotubes dan (b) Double-wall nanotubes

Simone Musso pada tahun 2007 melakukan penelitian tentang optimalisasi pertumbuhan karbon *nanotube* pada substrat silikon yang tidak dilapisi dengan metode CVD. Penelitiannya menggunakan CVD reaktor yang terdiri dari tabung kuarsa dengan panjang 100 cm dan diameter 4,2 cm. *Furnace* yang digunakan memiliki panjang 60 cm. Suhu operasi yang digunakan adalah 800°C - 1100°C dan tekanan atmosferik. Sumber katalis adalah *ferrocene* (kemurnian 98%), substrat silikon, camphor sebagai prekursor karbon, dan gas nitrogen sebagai gas inert. Hasil yang didapatkan adalah CNT dengan diameter 40nm dan ketebalan beragam antara beberapa mikrometer hingga 1 milimeter.



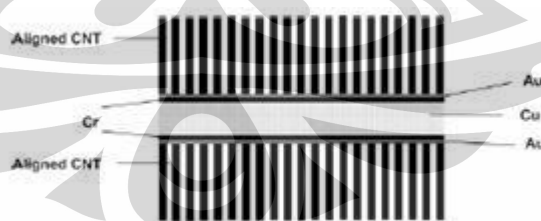
Gambar 2.16 Sistem Reaktor Thermal-CVD

Supriya Chakrabarti (2006), melakukan penelitian tentang pertumbuhan vertikal karbon *nanotube* dengan menggunakan teknik CVD. Sumber gas yang digunakan adalah gas etilen, *carrier gas* adalah gas hidrogen dan gas helium, dan menggunakan uap air. Uap air digunakan untuk membantu menghilangkan karbon amorf yang terdapat di permukaan katalis. Substrat yang digunakan adalah Si yaitu SiO_2 dan juga lapisan Al_2O_3 . Katalis yang digunakan adalah Fe. Suhu operasi 750°C dan tekanan 1 atm. Hasil yang didapatkan adalah SWNT dengan diameter antara 2-3nm dan 80% dari CNT yang dihasilkan merupakan SWNT.

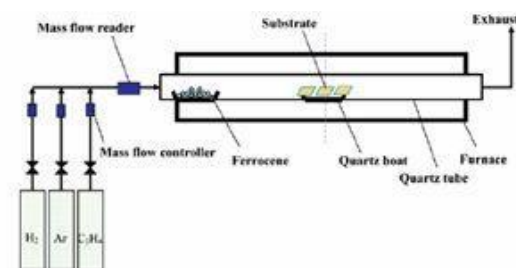


Gambar 2.17 Mekanisme Pertumbuhan CNT dengan Metode CVD

Pada tahun 2007, Huan Wang melakukan penelitian menggunakan substrat silikon berbentuk pelat dengan beberapa lapisan yaitu copper dan aurum. Diameter reaktor yang digunakan adalah 2,5 cm dan panjang 70 cm. Reaktor tersebut dioperasikan pada suhu 800⁰C dengan waktu reaksi 60 menit. Hasil yang didapatkan adalah aligned MWNT dengan ketinggian 125 mikrometer pada kedua sisi substrat.



Gambar 2.18 Struktur CNT pada Substrat



Gambar 2.19 Reaktor CNT (Huan Wang, 2007)

2.5. Stainless Steel

Stainless steel dikenal juga dengan nama *inox* atau *inox steel* yang berarti baja dengan minimal 11% massa kromium. *Stainless steel* tidak berkarat dan tidak mudah rusak. *Stainless steel* berbeda dengan baja karbon. Hal ini dapat dilihat dari perbedaan banyaknya kromium yang terkandung pada baja tersebut. Baja karbon dapat terkorosi ketika terekspos dengan udara atau uap air membentuk lapisan oksida besi. Lapisan oksida besi ini akan aktif dan mempercepat terjadinya korosi dengan membentuk lebih banyak oksida besi. *Stainless steel* memiliki kandungan kromium yang cukup banyak. Kandungan kromium ini dapat membentuk lapisan kromium oksida yang merupakan lapisan film yang pasif dan akan mencegah terjadinya korosi pada lapisan permukaan.

Terdapat 3 jenis *stainless steel*. Ketiga jenis ini dapat dibedakan menurut struktur mikro dan fasa kristal utamanya. Ketiga jenis tersebut adalah

- *Austenitic*

Austenitic steel memiliki *face centered* kristal kubik sebagai fasa utamanya. *Austenitic steel* merupakan logam campuran antara kromium dan nikel (terkadang mangan dan nitrogen). Struktur tipe ini sesuai dengan tipe 302 dengan komposisi besi, 18% kromium, dan 8% nikel. *Austenitic steel* ini tidak dapat dikeraskan dengan proses pemanasan. Selain tipe 302, *austenitic steel* juga sesuai dengan tipe 304 dengan komposisi 18-20% kromium and 8-10% nikel.

- *Ferritic*

Ferritic steels memiliki ferrit yaitu *body centered* kristal kubik sebagai fasa utamanya. Tipe ini mengandung besi dan kromium. Sesuai dengan tipe 304 dengan komposisi 17% krom, maka *ferritic* lebih sukar diubah bentuknya dibandingkan *austenitic steel*.

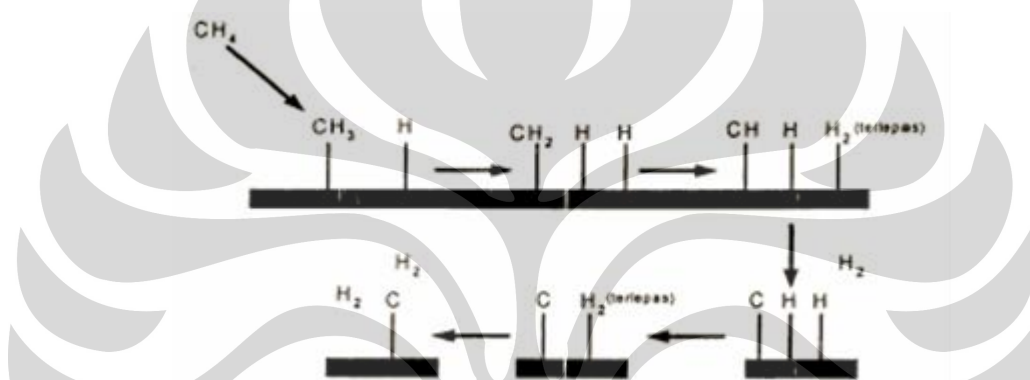
- *Martencitic*

Karakteristik struktur mikro dari *martencitic orthorhombic* pertama kali diteliti oleh German microscopist Adolf Martens sekitar tahun 1980. *Martensitic steel* merupakan baja karbon yang sangat sedikit sekitar tipe 410 dengan komposisi besi, 12% kromium, dan 0.12% karbon. *Martensitic*

dapat dikeraskan tetapi hal ini akan menurunkan ketangguhan baja sehingga menjadi rapuh.

2.6. Mekanisme Pertumbuhan Karbon pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.

Pada reaksi dekomposisi katalitik metana, sebuah molekul metana direngkai menjadi sebuah molekul karbon dan dua buah molekul hydrogen (gambar). Atom hidrogen terputus satu persatu membentuk ion karbonium dan pada akhirnya didapatkan sebuah molekul atom karbon dan dua molekul hidrogen pada akhir reaksi.



Gambar 2.20 Mekanisme Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

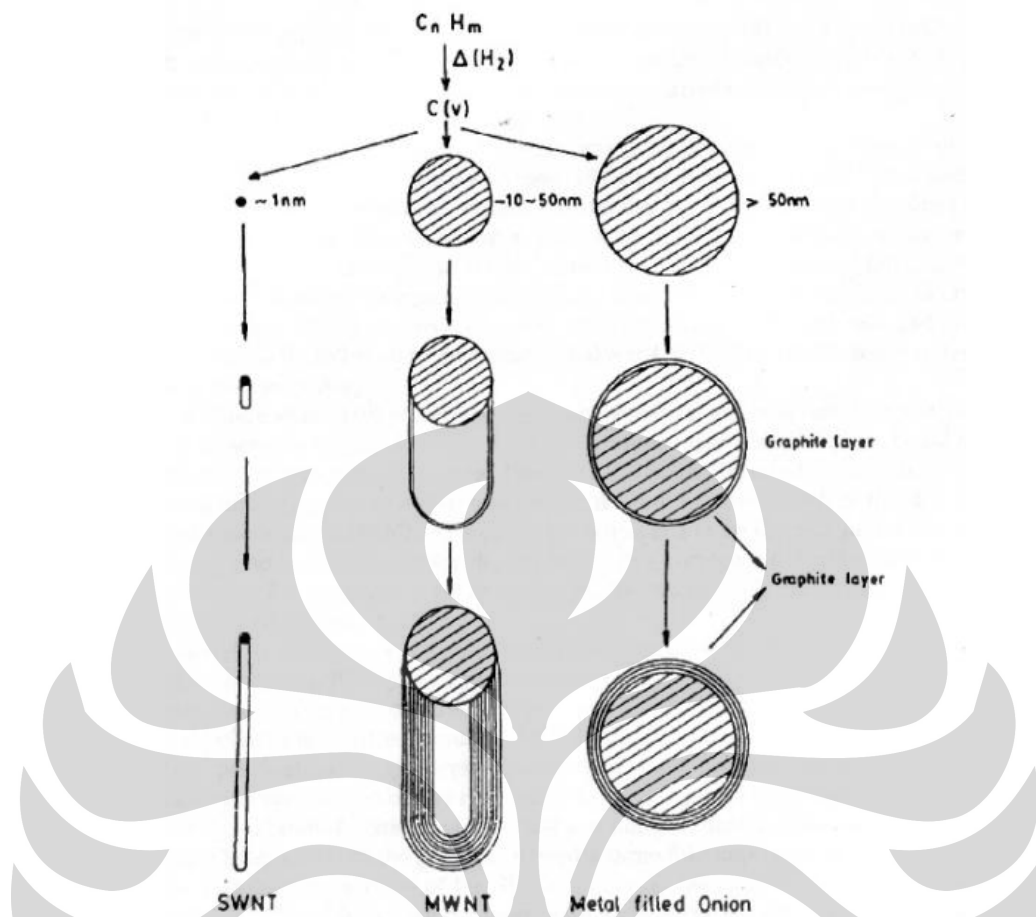
Mekanisme pertumbuhan karbon nano tube menurut Baker and Harris terdiri dari empat tahap. Pada tahap pertama, hidrokarbon terdekomposisi di atas lapisan logam untuk mengeluarkan hidrogen dan karbon yang terlarut di dalam partikel. Tahap kedua adalah tahap difusi. Karbon berdifusi melalui partikel logam dan terpresipitasi untuk membentuk badan-badan filamen. Masuknya karbon lebih cepat jika dibandingkan dengan difusi yang terjadi pada bulk, sehingga menyebabkan terjadinya akumulasi karbon pada permukaan yang harus dihilangkan untuk mencegah terjadinya penyumbatan pada permukaan aktif. Hal ini dilakukan dengan difusi permukaan dan karbon yang membentuk kulit pada badan filamen utama, pada tahap ketiga. Pada tahap keempat, terjadi deaktivasi katalis dan terjadi terminasi pada pertumbuhan tabung. Obrelin et al. mengusulkan mekanisme dimana difusi bulk tidak *significant* dan karbon ditransportasikan di sekitar partikel dengan difusi permukaan. Diameter dari karbon *nanotube*

dikontrol dengan ukuran partikel katalis, ukuran partikel katalis yang nano menghasilkan SWNT.

Mekanisme pertumbuhan karbon oleh Chen 2001 adalah diawali dengan pembentukan lapisan karbon yang membungkus partikel katalis yang meleleh, lalu diikuti dengan pecahnya lapisan karbon tersebut akibat tekanan uap logam katalis dan impuls mekanik yang diterima katalis. Selanjutnya mereka berpendapat bahwa jika kecepatan partikel logam lebih cepat dari pembentukan lapisan karbon maka nanokarbon yang diperoleh berbentuk *nanochains* atau *torn shells*, namun jika hal yang sebaliknya terjadi maka nanokarbon yang diperoleh adalah *bamboo-shaped carbon*. Karbon nanotube baru diperoleh bila laju pembentukan lapisan karbon dan laju pergerakan logam sama.

Teori mekanisme pertumbuhan oleh Chen, 2001 menyatakan bahwa laju pembentukan karbon dan laju pergerakan katalis dipengaruhi oleh keadaan katalis pada saat reaksi terjadi dan juga oleh komposisi umpan. Karbon *bamboo-shaped* baru terbentuk bila partikel logam berada dalam keadaan *quasi-liquid*, yaitu keadaan dimana logam setengah meleleh. Keadaan *quasi-liquid* itu memungkinkan logam untuk bergerak sepanjang struktur grafit, namun karena hanya sedikit meleleh, laju pergerakan logamnya tidak lebih cepat daripada laju pembentukan lapisan karbon.

Apabila permukaan partikel logam kurang jenuh karbon, nukleus yang dihasilkan berukuran relatif besar dan tumbuh secara berkesinambungan menghasilkan pembentukan lembaran grafit yang menutupi sebagian besar permukaan partikel logam. Bentuk nanokarbon yang dihasilkan ini dinamakan nanofilamen. Proses pembentukan *Multi-Walled Nanotube* (MWNT) hampir sama dengan pembentukan nanofilamen tetapi MWNT terbentuk pada permukaan partikel logam yang lebih jenuh karbon. Pertumbuhan SWNT terjadi jika beberapa nukleus mengendap pada permukaan partikel logam yang sama sehingga permukaan partikel logam sangat jenuh karbon.



Gambar 2.21 Pertumbuhan Karbon Nano Tube

2.7. Preparasi Katalis

2.7.1 Pengaruh Komposisi Katalis

Penggunaan katalis berbasis nikel (Ni) pada berbagai penelitian dekomposisi metana karena nikel merupakan katalis yang paling aktif untuk reaksi dekomposisi katalitik metana diantara logam-logam lainnya. Namun Ni mudah terdeaktivasi dan sintering sehingga menyebabkan diameter partikel Ni membesar, hal ini akan mempengaruhi kualitas karbon nanotube (Muharam, 2007b). Beberapa penelitian katalis berbasis nikel selanjutnya diarahkan untuk mengatasi deaktivasi dan terjadinya sintering (Ermakova, 2002; Purwanto, 2005a,b dan Muharam, 2007a,b).

Penambahan promotor baik *structural promotor* maupun *textural promotor* dapat mencegah terjadinya sintering. *Structural promotor* yang biasa digunakan dalam penelitian adalah logam Cu (Chen, 2001; Purwanto, 2005a,b);

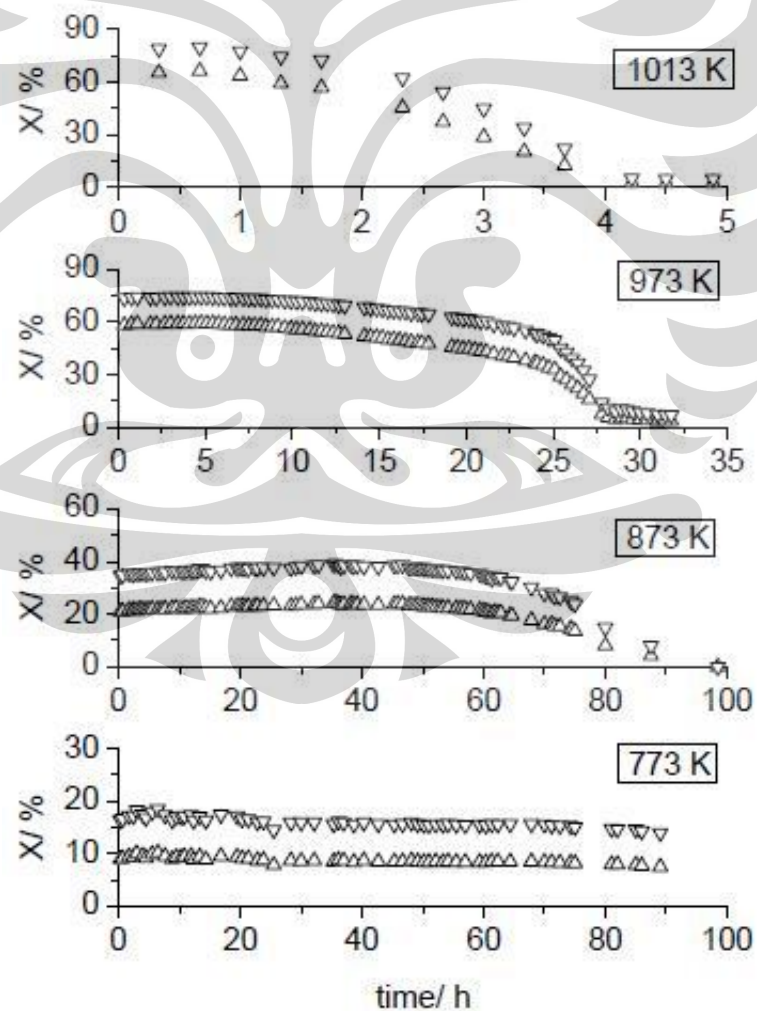
karena dapat menurunkan titik leleh katalis dan meningkatkan aktivitas katalis (Chen, 2004). Titik leleh katalis yang rendah diperlukan karena kondisi katalis dalam keadaan liquid diperlukan sebagai syarat terbentuknya karbon nanotubes (Chen, 2001). Cu mempunyai afinitas yang tinggi terhadap struktur grafit sehingga menghambat terbentuknya lapisan karbon pada grafit dan menghambat laju pertumbuhan deposit karbon pada permukaan Ni serta mencegah pembungkusan partikel katalis oleh lapisan karbon. Di samping itu Cu menambah mobilitas hidrogen dalam reaksi hidrogenasi katalitik sehingga meningkatkan yield hidrogen (Chen, 2004). Penambahan *textural promotor* yang banyak digunakan adalah senyawa *hard to reduce oxide*, seperti Al_2O_3 (Chen, 2004; Purwanto, 2005a,b), SiO_2 (Ermakova, 1999; Ermakova, 2001), MgO (Ermakova, 1999; Ermakova, 2001), Nb_2O_5 .

Dari hasil penelitian tersebut memperlihatkan bahwa katalis multimetall Ni-Cu-Al merupakan katalis yang paling baik ditinjau dari kualitas produk CNT maupun yield produk hidrogen serta *life time*. Promotor Cu mempunyai peran pencegah *sintering* karena partikel Cu akan menyisip diantara partikel Ni dan promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) sehingga mencegah terjadinya sintering dan menjaga diameter partikel Ni tetap kecil.

Chen,2004 melakukan percobaan dengan memvariasikan komposisi katalis Ni-Cu-Al seperti yang ditunjukkan pada tabel berikut. Percobaan dilakukan dengan gas metana 99,99%, tubular reaktor dengan diameter dalam 38 mm, 100mg katalis digunakan pada 200-260 meshes, tekanan atmosferik, laju alir metana 68 ml/min(STP), dan carrier gas argon. Dilakukan reduksi dengan menggunakan gas hidrogen selama 2 jam pada suhu 973 K. Setelah konversi metana menurun hingga 3% maka reaksi dihentikan, dan dilakukan analisis karbon yang terbentuk secara analitik *balance*. Berikut adalah perbandingan komposisi katalis dan hasilnya.

Tabel 2.1 Komposisi katalis dan hasilnya (Chen, 2004)

| Sampel | Komposisi/ rasio atomik (Ni:Cu:Al) | g C/ g cat | gC/g katalis | Suhu operasi (K) | Produk nanokarbon |
|--------------|--|---------------|-----------------|---------------------------|---|
| 15Ni-3Cu-2Al | 15:3:2 | 39 | 39 | 773 873 973 1013 | <i>Octopus-shaped dan fibrous nanocarbon</i> <i>Octopus-shaped dan fibrous nanocarbon</i> <i>Octopus-shaped dan hollow fiber</i> <i>Hollow fiber</i> |
| 2Ni-1Cu-1Al | 2:1:1 | 152 | 152 | 773 1013 | <i>Octopus-shaped dan fibrous nanocarbon</i> <i>Hollow fiber</i> |
| 3Ni-3Cu-2Al | 3:3:2 | 42 | 42 | 1013 | <i>Hollow fiber</i> |
| 1Ni-1Cu-1Al | 1:1:1 | 41 | 41 | 1013 | <i>Nanofiber dan nanoballs</i> |

**Gambar 2.22** Grafik Konversi Metana dan Konsentrasi Hidrogen

Grafik 2.22 Kurva konversi metana dan konsentrasi hidrogen pada gas keluaran selama dekomposisi metana pada 1013 K untuk empat katalis berbeda, 15Ni-3Cu-2Al, 2Ni-1Cu-1Al, selama dekomposisi metana pada 1013 K untuk empat katalis berbeda, 15Ni-3Cu-2Al, 2Ni-1Cu-1Al, 3Ni-3Cu-2Al, dan 1Ni-1Cu-1Al; (Δ) konversi metana, (\blacktriangledown) konsentrasi hidrogen (Chen,2004).

2.7.2. Pengaruh Asam Sitrat

Katalis yang efektif dengan struktur perovskite dapat dibuat dengan complexmetry asam sitrat. Senyawa perovskite adalah senyawa oksida kompleks yang mempunyai struktur geometri oktahedral dan secara umum rumus molekulnya dapat ditulis sebagai ABO_3 . Penambahan asam sitrat pada preparasi katalis bertujuan untuk mendapatkan ukuran partikel katalis yang efektif misalnya Ni sebagai partikel logam untuk pertumbuhan CNT dengan reaksi kompleks antara asam sitrat dengan ion logam.

Asam sitrat tidak terdapat pada saat proses untuk mendapatkan prekursor katalis. Pengaruh asam sitrat terhadap pertumbuhan karbon nanotube adalah sebagai agen pengompleks. Agen pengompleks adalah suatu zat yang mampu membentuk senyawa kompleks dengan zat lain. Penelitian yang dilakukan oleh Jiang 2009 adalah memvariasikan konsentrasi asam sitrat dengan menggunakan prekursor katalis $LaNiO_3$ yang diperoleh dari Ni_2O_3 dan La_2O_3 . Berdasarkan hasil data eksperimen didapatkan bahwa perubahan konsentrasi dari asam sitrat menyebabkan perubahan hasil CNT dan *patterns* yang didapatkan. Berikut adalah tabel data perubahan konsentrasi asam sitrat banding *metal ions*.(Jiang,2009)

Tabel 2.2 Korelasi Data Konsentrasi Asam Sitrat dengan Metal Ion

| Asam sitrat : Ni dan La (atomic ratio) | Prekursor Katalis | Yield CNT (g CNT/g LaNiO ₃ .h) | Permukaan kristal partikel Ni | Ukuran partikel Ni/nm |
|--|----------------------|---|-------------------------------------|-----------------------------|
| 0:1 | I | 5.15 | | |
| 1:1 | II | 8.47 | | |
| 2:1 | III | 13.46 | (111) | 27.5 |
| | | | (200) | 13.7 |
| 3:1 | IV | 4.07 | (111) | 22.5 |
| | | | (200) | 68.6 |
| 4:1 | V | 6.70 | | |
| 5:1 | VI | 8.21 | | |
| 6:1 | VII | 7.60 | | |
| 7:1 | VIII | 6.48 | | |
| 8:1 | IX | 6.81 | | |

2.7.3. Pengaruh asam nitrat

Asam nitrat (HNO₃) adalah sejenis cairan korosif yang tak berwarna, dan merupakan asam beracun yang dapat menyebabkan luka bakar. Larutan asam nitrat dengan kandungan asam nitrat lebih dari 86% disebut sebagai asam nitrat berasap, dan dapat dibagi menjadi dua jenis asam, yaitu asam nitrat berasap putih dan asam nitrat berasap merah.

Salah satu kegunaan utama HNO₃ adalah untuk *passivation* baja atau stainless steel setelah proses fabrikasi selesai, sebelum digunakan untuk menyimpan bahan kimia tertentu. Dengan proses *passivation* ini oksida logam yang terbentuk selama pengelasan (welding), kontaminan dan partikel logam lain dibersihkan dari permukaan baja. Nantinya akan terbentuk pula lapisan tipis (film) oksida logam yang akan melindungi baja dari proses oksidasi lanjutan.

2.7.4. Metode sol-gel

Sol merupakan partikel halus yang terdispersi dalam suatu fasa cair membentuk koloid, sedangkan *gel* adalah suatu padatan yang tersusun dari fasa cair dan padat dimana kedua fasa tersebut akan saling terdispersi dan memiliki jaringan internal. Proses *sol-gel* didefinisikan sebagai sintesis jaringan anorganik melalui reaksi kimia dalam larutan dengan suhu yang rendah. Dalam proses tersebut terjadi perubahan fasa dari suspensi koloidal (*sol*) membentuk fasa cair kontinyu (*gel*).

Prekursor yang digunakan pada metode *sol-gel* umumnya adalah logam garam anorganik atau senyawa logam organik yang dikelilingi oleh ligan yang reaktif seperti logam alkoksida ($M(OR)_z$), dimana R untuk grup alkil (C_xH_{2x+1}). Logam alkoksida yang paling banyak digunakan karena sifatnya yang mudah bereaksi dengan air diantara lain Tetrametoksisilan (TMOS), Tetraetoksisilan (TEOS), dan alkoksida lainnya seperti Aluminium isopropoksida (ALIP) atau Aluminium sebutoksida.

2.8. Teknik Pelapisan *Dip-Coating*

Teknik *dip-coating* merupakan teknik pelapisan *sol-gel* yang paling sederhana. Teknik *dip-coating* adalah proses dimana substrat yang akan dilapisi dicelup ke dalam larutan sol dan diangkat dengan kecepatan tertentu pada suhu dan kondisi atmosferik yang terkontrol. Metode ini banyak digunakan terutama untuk mendapatkan lapisan yang seragam dengan ketebalan kurang lebih 100 nm. Pelapisan katalis film pada membran dilakukan dengan metode ini karena katalis yang dihasilkan relatif tipis. Katalis yang terdeposisi pada kawat diusahakan setipis mungkin agar *pressure drop* dalam reaktor dapat dihindari. Ketebalan lapisan yang dihasilkan dari metode *dip-coating* merupakan fungsi dari beberapa variabel, yaitu: viskositas, kecepatan pengangkatan, tegangan permukaan cairan-udara, dan gravitasi.

Prosedur *dip-coating* secara umum dibagi menjadi tiga tahap, yaitu:

- pencelupan material yang akan dilapisi ke dalam sol,
- pengangkatan material dari larutan sol, dan
- pengeringan sol, air, dan alkohol berlebih.

Prosedur tersebut dapat diulang beberapa kali untuk mendapatkan ketebalan lapisan yang diinginkan.

2.9. Residence time

Residence time adalah waktu yang diperlukan oleh suatu reaksi untuk mencapai konversi tertentu.

$$t = \frac{V_1}{Q_1} \quad (2.1)$$

Persamaan ini berlaku jika tidak ada komponen yang dihasilkan atau rusak selama proses reaksi sehingga berada pada densitas yang konstan. t yang konstan selama *scale-up* dapat diaplikasikan selama reaktor kimia dapat merubah *yield* reaksi ataupun selektivitas. Untuk peralatan *heat* dan *mass transfer* digunakan *scale-up* dengan t konstan.

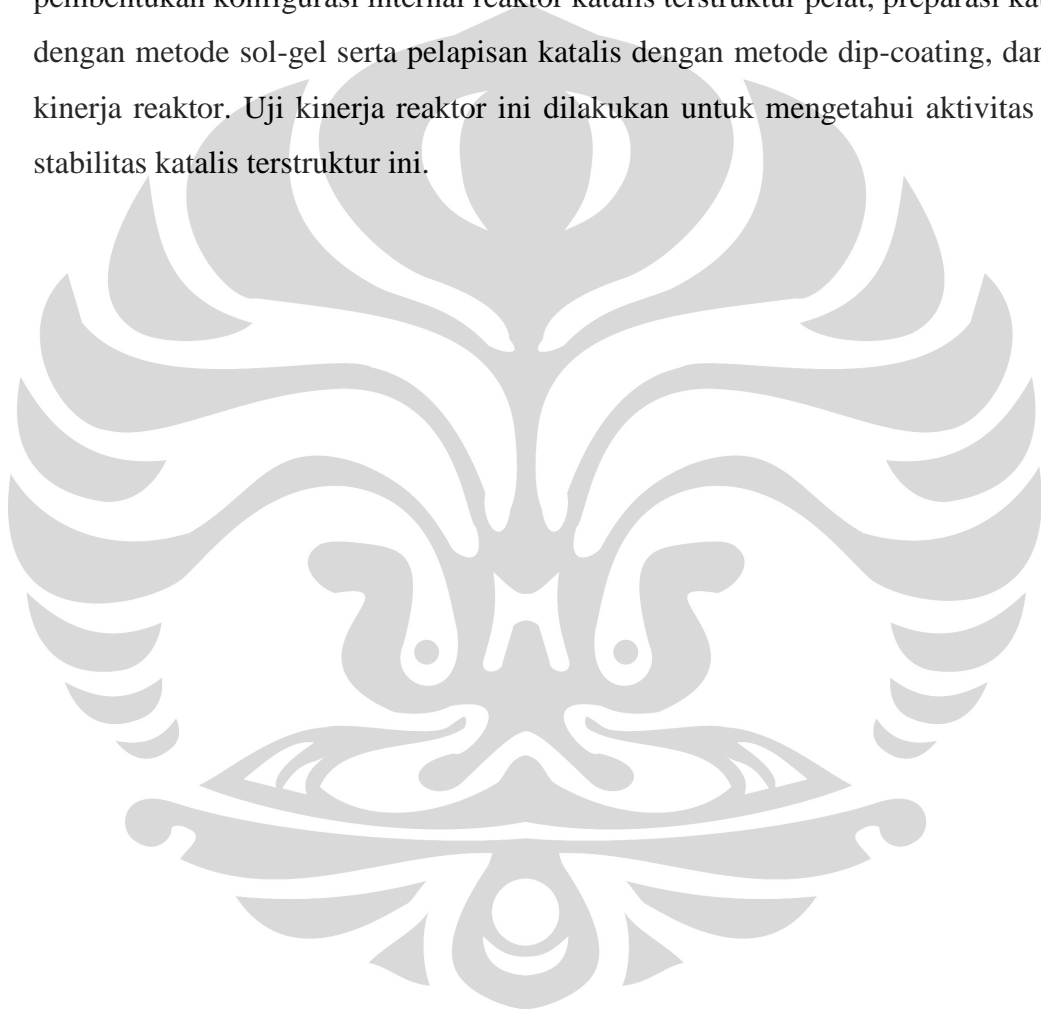
Apabila $t_2 > t_1$ menyebabkan volume meningkat lebih cepat yang akan memperbesar inventori dari suatu proses. Kasus $t_1 > t_2$ menyebabkan reaktor overdesign sehingga temperatur, pressure, dan komposisi berubah.

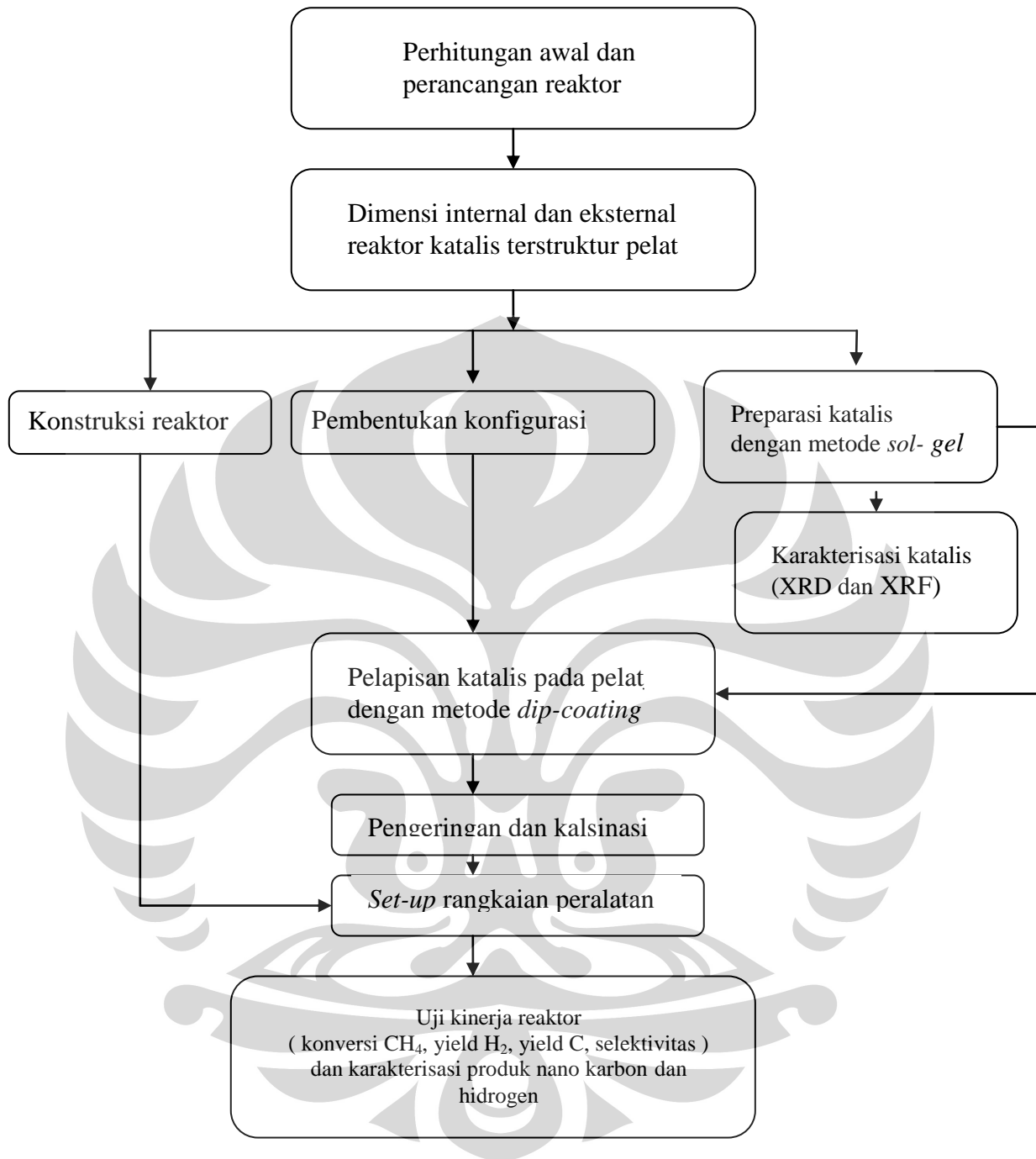
BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Tahap Penelitian

Penelitian akan dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dan Bahan Alam, Departemen Teknik Kimia Departemen Teknik Kimia FTUI, Depok. Secara garis besar, penelitian ini terbagi menjadi perancangan reaktor, pembentukan konfigurasi internal reaktor katalis terstruktur pelat, preparasi katalis dengan metode sol-gel serta pelapisan katalis dengan metode dip-coating, dan uji kinerja reaktor. Uji kinerja reaktor ini dilakukan untuk mengetahui aktivitas dan stabilitas katalis terstruktur ini.





Gambar 3. 1 Diagram Produksi Nanokarbon dengan Reaktor Gauze

3.2. Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan selama penelitian adalah sebagai berikut:

Untuk Preparasi Katalis

- *Beaker Glass*
- Gelas ukur

- Spatula
- *Waterbath*
- Timbangan
- Cawan keramik
- *Integrator*
- *Magnetic Stirrer*
- *Digital Atmospheric Furnace*

Untuk *set-up* reaktor:

- Tabung kuarsa
- *Tube Furnace*
- Lempeng baja *stainless-steel*
- Termokopel
- GC (*Gas Chromathography*)
- *Flowmeter* dengan *mass flow controller*

Bahan-bahan yang digunakan:

- Nickel nitrate hexahydrate, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Aluminium nitrate trihydrate, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Copper nitrate nonahydrate, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Citric Acid, $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$, JT Baker
- *Deionized (demineralized) water*
- Gas metana

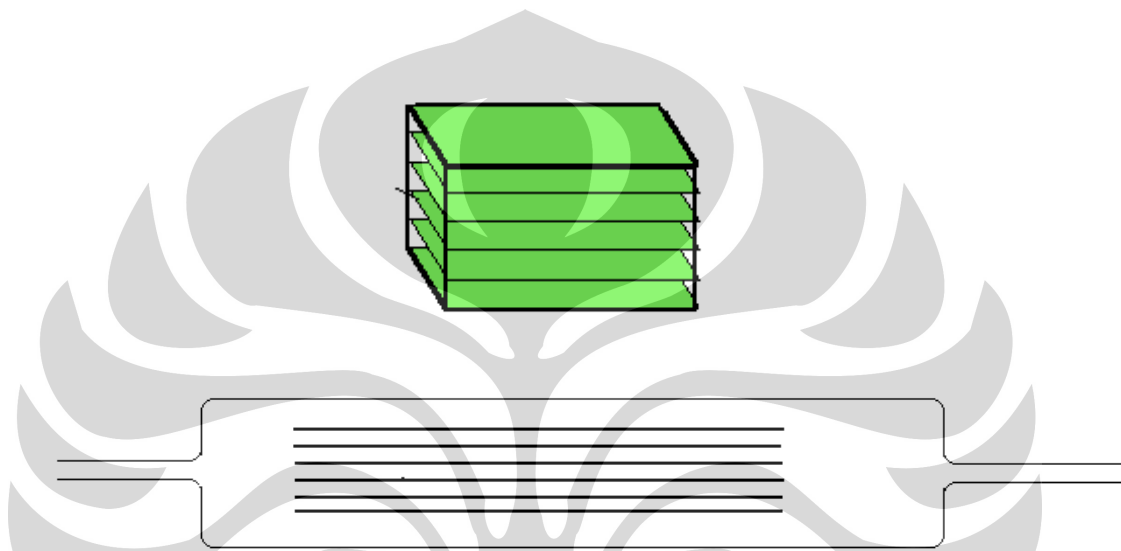
3.3. Prosedur Penelitian

Tahap 1 : Perhitungan Awal dan Perancangan Reaktor

1. Menentukan dimensi reaktor yaitu diameter dan panjang reaktor.
2. Menghitung jumlah pelat yang dibutuhkan berdasarkan luas permukaan katalis *gauze* dan dengan panjang efektif yang sama dengan *gauze*.
3. Menghitung jarak antar pelat dengan lebar konfigurasi pelat keseluruhan maximal adalah diameter internal reaktor.
4. Mendesain rak pelat sesuai dengan ukuran dan jarak antar pelat
5. Menentukan dimensi dan spesifikasi *furnace* yang akan digunakan untuk reaktor tersebut.

Tahap 2: Pembentukan konfigurasi pelat

1. Memotong pelat yang akan digunakan dengan panjang dan lebar sesuai perhitungan pada tahap 1.
2. Membentuk konfigurasi pelat dengan memparalelkan pelat dengan menggunakan konfigurasi rak pelat, dengan struktur seperti pada gambar berikut.



Gambar 3.2 Struktur Konfigurasi Pelat

Tahap 3: Preparasi katalis dengan metode *sol-gel*

Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni/Cu/Al yang dipreparasi dengan metode *sol-gel* sebagai berikut:

1. Seluruh logam nitrat yang terdiri dari 477 gram $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 198 gram $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, dan 307,25 gram $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan ke dalam *deionized water* sebanyak 1100 ml.
2. Asam sitrat sebanyak 689 gram ditambahkan ke dalam larutan tersebut.
3. Larutan diaduk selama 1 jam pada temperatur 80°C hingga membentuk larutan sol yang sangat *viscous* (kental).

Tahap 4: Karakterisasi Katalis

1. Melakukan analisa XRF untuk mengkarakterisasi komposisi katalis.
2. Melakukan analisa XRD untuk mengkarakterisasi komponen kristalinitas dan senyawa yang terbentuk.

Tahap 5: Konstruksi reaktor

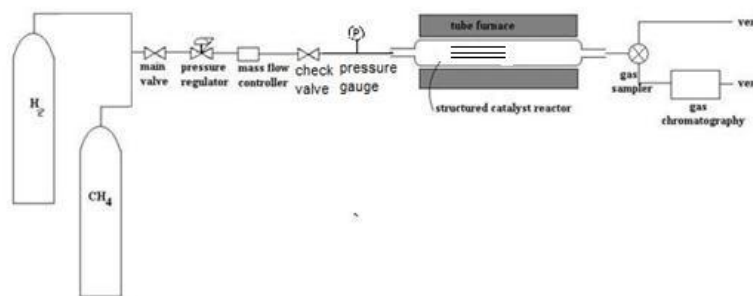
1. Mengkonstruksi reaktor dengan bahan utama tabung kuarsa dengan ukuran yang telah ditentukan pada tahap 1.

Tahap 6: Pelapisan katalis dengan metode *dip-coating*

1. Pelat yang telah dibentuk direndam di dalam aseton untuk menghilangkan pengotornya, lalu dicuci dengan air untuk membilas aseton yang masih menempel di permukaan pelat, kemudian dikeringkan.
2. Pelat direndam dalam larutan asam nitrat untuk menciptakan lapisan nitrat (seperti nikel nitrat) pada permukaan *mesh* yang lebih cocok dan reaktif dengan prekursor katalis nitrat lalu dikeringkan
3. Menimbang berat awal substrat (W_0)
4. Substrat direndam dalam larutan katalis *sol-gel*.
5. Substrat diangkat dengan kecepatan konstan dengan menggunakan *integrator* lalu dikeringkan di dalam *digital atmospheric furnace* pada temperatur 120 °C selama 1 jam.
6. Menimbang berat substrat (W_1)
7. Mengulang prosedur nomor 2 s/d 5 beberapa kali agar *loading* katalis yang melekat pada kawat lebih besar.
8. Memasukkan konfigurasi pelat ke dalam rak
9. Substrat dikeringkan dan kemudian dikalsinasi pada suhu 700°C
10. Menimbang berat akhir substrat (W_t)

Tahap 7 : Set-up Rangkaian Peralatan

1. Merangkai peralatan yang akan dipakai dan menyambung peralatan tersebut: Tabung gas, mass flow meter, mass flow controller, reaktor, aliran vent, GC dengan reaktor.
2. Mengkalibrasi laju alir *mass flow controller* dan mengkalibrasi GC .



Gambar 3.3 Set-up Rangkaian Reaktor

Tahap 8: Kalibrasi Alat

Sebelum dilakukan uji aktivitas katalis, dilakukan kalibrasi gas kromatografi dan *mass flow controller*. Kalibrasi gas kromatografi dilakukan untuk menentukan *retention time* dari gas umpan dan gas produk serta kuantitas gas yang dihasilkan. Kalibrasi gas kromatografi ini dilakukan dengan menginjeksikan gas secara langsung ke GC dengan menggunakan *syringe* dan dengan melewati gas melalui reaktor kosong menuju ke GC.

Kalibrasi *mass flow controller* dilakukan untuk mengetahui laju alir yang sebenarnya dari angka yang tertera di *mass flow controller*. Kalibrasi ini dilakukan dengan mengalirkan gas umpan, yaitu metana ke *bubble soap* sesuai dengan laju alir yang tertera pada *mass flow controller*. Lamanya waktu yang dibutuhkan oleh gelembung udara melewati jarak tertentu dapat dikonversikan menjadi besaran laju alir.

Tahap 9: Uji kinerja reaktor dan karakterisasi produk nano karbon

Uji kinerja produksi dilakukan setelah katalis dibuat dan kalibrasi dilakukan. Uji kinerja reaktor dilakukan pada temperatur 700⁰C dan tekanan atmosferik. Adapun tahapannya sebagai berikut:

1. Menimbang berat pelat yang telah dilapisi katalis.
2. Memasukkan katalis terstruktur dalam reaktor
3. Set temperatur reaksi dalam tube furnace pada temperature 700 °C.

4. Mengalirkan gas hidrogen pada suhu atmosferik, dengan laju alir 15 L/jam selama 20 menit.
5. Mengalirkan umpan metana pada suhu atmosferik, dengan laju alir 42 L/jam.
6. Mengambil data laju alir produk, peak area produk setiap periode tertentu (5 menit) selama 20 menit dengan Gas Chromatography (GC) untuk uji aktifitas katalis. Untuk uji stabilitas katalis, data diambil setiap 5 menit selama 20 menit dan setelah itu data diambil setiap 20 menit .
7. Menimbang berat pelat setelah produksi dan reaksi dihentikan, menghitung berat karbon *nanotube* yang telah terbentuk dan menempel pada katalis terstruktur.
8. Mengolah data untuk menghitung parameter kinerja produksi. Kinerja produksi yang diamati meliputi kemampuan konversi metana, *yield* hidrogen dan karbon.

Konversi metana didefinisikan sebagai persentase metana yang bereaksi terhadap metana yang dimasukkan ke reaktor.

$$X_{CH_4} = \frac{[(CH_4 \text{ in}) - (CH_4 \text{ out})]}{(CH_4 \text{ in})} \times 100 \% \quad (3.1)$$

Sementara itu definisi *yield* dan selektivitas untuk hidrogen dan *nanotube* karbon dalam penelitian ini adalah sebagai berikut:

$$Yield \ H_2 = \frac{[H_2]_{produk}}{2 \times [CH_4 \text{ in}]} \times 100 \% \quad (3.2)$$

$$Yield \ C = \frac{\text{massa karbon yang dihasilkan}}{\text{masa katalis}} \times 100 \% \quad (3.3)$$

$$Selektivitas \ H_2 = \frac{[H_2]_{produk}}{\text{total produk}} \times 100 \% \quad (3.4)$$

8. Karakterisasi produk karbon yang dihasilkan. Karakterisasi produk karbon *nanotube* diperlukan untuk mengetahui properti nanokarbon yang dihasilkan seperti diameter *nanotube*. Karakterisasi yang dilakukan adalah

dengan TEM (*Transmission Electron Microscopy*). Sebelum dikarakterisasi nanokarbon yang dihasilkan dilapisi pada resin Epoxy, dan kemudian dipotong dengan menggunakan Microtome Reichert Ultracut S Leica. Karakteristisasi produk juga dilakukan dengan menggunakan SEM yang bertujuan untuk mengetahui morfologi dan distribusi karbon *nanotube* yang dihasilkan pada reaksi tersebut.



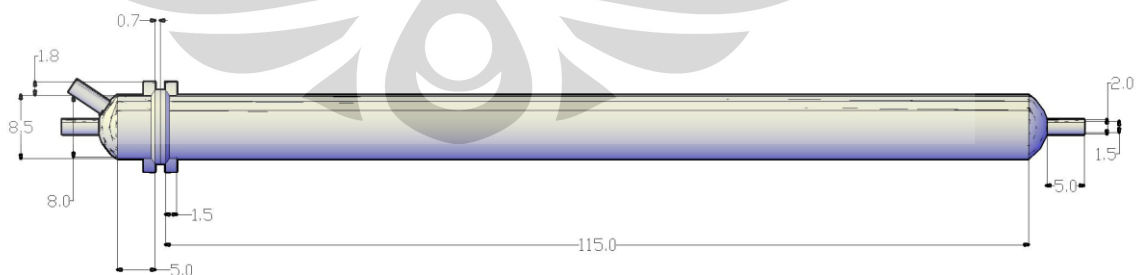
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1. Perancangan Reaktor dan Internal Reaktor Katalis Terstruktur Pelat

Basis perhitungan diameter dan panjang reaktor disesuaikan dengan perhitungan luas permukaan katalis yang dibutuhkan katalis terstruktur *gauze* Francy,2009 yaitu sebesar 2938,98 cm². Panjang efektif reaktor pelat sejajar ini juga disamakan dengan reaktor katalis terstruktur *gauze* yaitu 32 cm. Perhitungan diameter reaktor yang digunakan juga disamakan dengan diameter reaktor katalis terstruktur *gauze* yaitu 8 cm (hasil ini merupakan hasil *scale-up* yang dilakukan dari reaktor Ira.Y,2008 dengan target produksi 150 gram produk nanokarbon).

Tabung kuarsa yang direalisasikan berdimensi diameter dalam= 8 cm, diameter luar = 8,5 cm, dan panjang tabung =120 cm. Tabung kuarsa reaktor katalis terstruktur pelat sejajar ini berbahan dasar kuarsa. Hal ini dikarenakan suhu reaksi yang cukup tinggi yaitu 700⁰C sehingga membutuhkan bahan dengan titik cair yang lebih tinggi daripada suhu tersebut. Kuarsa memiliki titik cair 1650⁰C sehingga sesuai untuk digunakan sebagai bahan tabung reaktor dalam penelitian ini.

Tabung kuarsa ini selanjutnya akan difabrikasi menjadi reaktor di bengkel fabrikasi bahan gelas dan kuarsa yang berbasis di Bandung. Reaktor untuk reaksi dekomposisi katalitik metana dengan katalis terstruktur pelat sejajar difabrikasi dengan desain sesuai dengan Gambar 4.1 dan 4.2 di bawah ini:



Gambar 4.1 Desain Reaktor Dalam Keadaan Tertutup



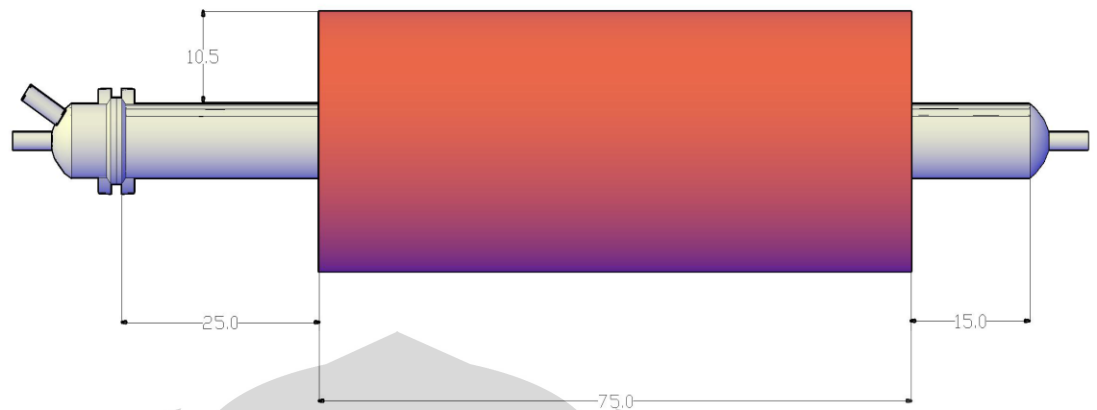
Gambar 4.2 Desain Reaktor Dalam Keadaan Terbuka



Gambar 4.3 Seal Penutup Reaktor

Reaktor didesain dengan dua inlet yaitu sisi horizontal dan diagonal. Inlet diagonal berfungsi sebagai masukan gas sumber yaitu metana dan inlet horizontal merupakan masukan termokopel yang digunakan untuk memvalidasi suhu yang terdapat di dalam reaktor sehingga reaksi tepat terjadi pada suhu 700°C . Reaktor didesain dengan penutup untuk memudahkan *loading* dan *unloading* sebelum dan sesudah reaksi. Penutup reaktor ditahan dengan seal seperti Gambar 4.3 untuk mencegah terjadinya kebocoran. Ukuran masukan dan keluaran disesuaikan desain laju alir gas yang masuk yaitu 140 L/hr.

Setelah fabrikasi reaktor, maka kita mendesain *furnace* yang akan digunakan untuk produksi nanokarbon ini. *Furnace* yang akan difabrikasi adalah *furnace* dengan sumber arus listrik yang dilengkapi dengan *digital* kontroler. *Furnace* dirancang dengan panjang 75 cm dan diameter dalam 9 cm. Perancangan diameter dalam *furnace* disesuaikan dengan diameter luar reaktor 8,5 cm. Panjang *furnace* didesain sedemikian sehingga memudahkan dalam proses *loading* dan *unloading* pelat baik sebelum maupun sesudah reaksi terjadi dan disesuaikan juga dengan desain panjang reaktor yaitu 115cm. *Furnace* yang akan difabrikasi didesain sesuai dengan Gambar 4.4 dan realisasi desain *furnace* tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.5 di bawah ini:



Gambar 4.4 Desain Reaktor dan *Furnace*



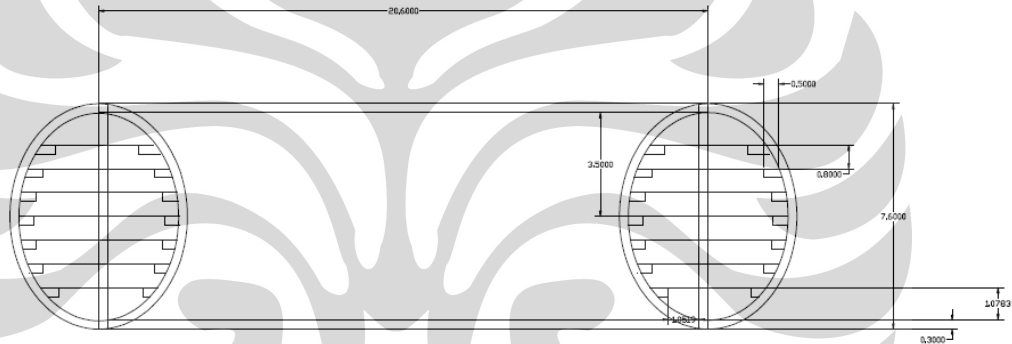
Gambar 4.5 Realisasi Desain *Furnace*

Perancangan internal reaktor didesain dengan basis untuk mendapatkan luas permukaan katalis $2938,98\text{cm}^2$. Perhitungan jumlah pelat yang dibutuhkan dihitung dengan panjang pelat 32cm dan lebar pelat maksimum sama diameter reaktor 8 cm yang merupakan lebar pelat maksimum yang dapat digunakan, maka diperlukan 7 buah pelat sejajar dengan ukuran lebar x panjang x tebal sebagai berikut:

- Pelat 1: 55 mm x 320mm x 1mm
- Pelat 2 : 64mm x 320mm x 1mm
- Pelat 3 : 70mm x 320mm x 1mm
- Pelat 4: 73mm x 320mm x 1mm

- Pelat 5: 70mm x 320mm x 1mm
- Pelat 6 : 64mm x 320mm x 1mm
- Pelat 7 : 55 mm x 320mm x 1mm

Perancangan lebar pelat dilakukan dengan lebar yang berbeda antarapelat yang satu dengan pelat yang lainnya agar konfigurasi pelat menyerupai bentuk lingkaran sehingga tidak terdapat banyak ruang kosong di dalam reaktor. Untuk memudahkan proses *loading* dan *unloading* katalis terstruktur tujuh pelat sejajar ini maka didesain rak untuk konfigurasi ketujuh pelat sejajar ini. Jarak antar satu pelat dengan pelat lainnya adalah 6mm dan panjang rak pelat adalah 20cm. Desain rak untuk konfigurasi pelat ini sesuai dengan Gambar 4.6 sebagai berikut:



Gambar 4.6 Desain Rak Pelat

Konfigurasi internal pelat sejajar dapat dilihat pada Gambar 4.7 di bawah ini:

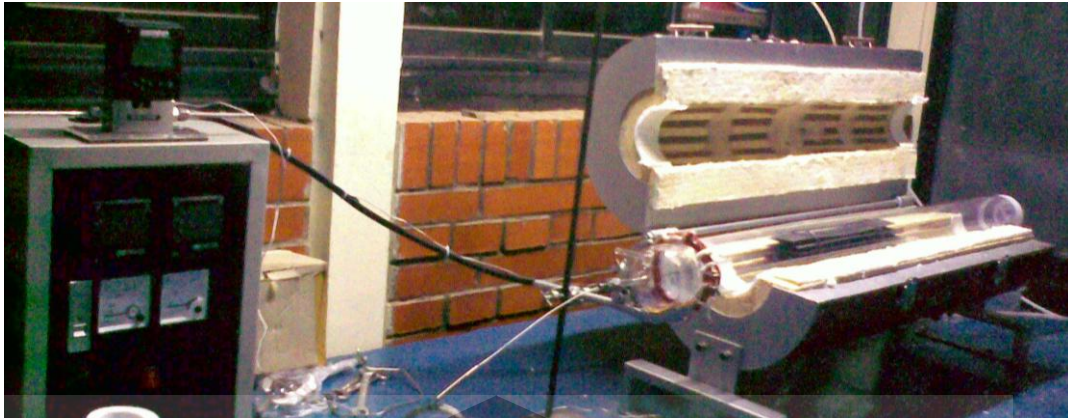


Gambar 4.7 Konfigurasi Pelat

Plate terbuat dari *stainless steel 304* yang akan digunakan sebagai substrat katalis. Struktur substrat *plate* yang digunakan terbuat dari *stainless steel* karena

plate akan digunakan untuk reaksi pada suhu 700 °C sehingga bahan yang digunakan harus memiliki titik leleh di atas suhu reaksi tersebut. *Stainless steel* 304 memiliki titik leleh 1920°C sehingga *stainless steel* cocok digunakan sebagai substrat katalis. Jarak antara tiap *plate* \pm 6 mm. Aliran gas metana akan mengalir diantara celah kedua *plate* dan reaksi terjadi di permukaan pelat ini saat terjadi kontak antara gas metana dengan katalis.

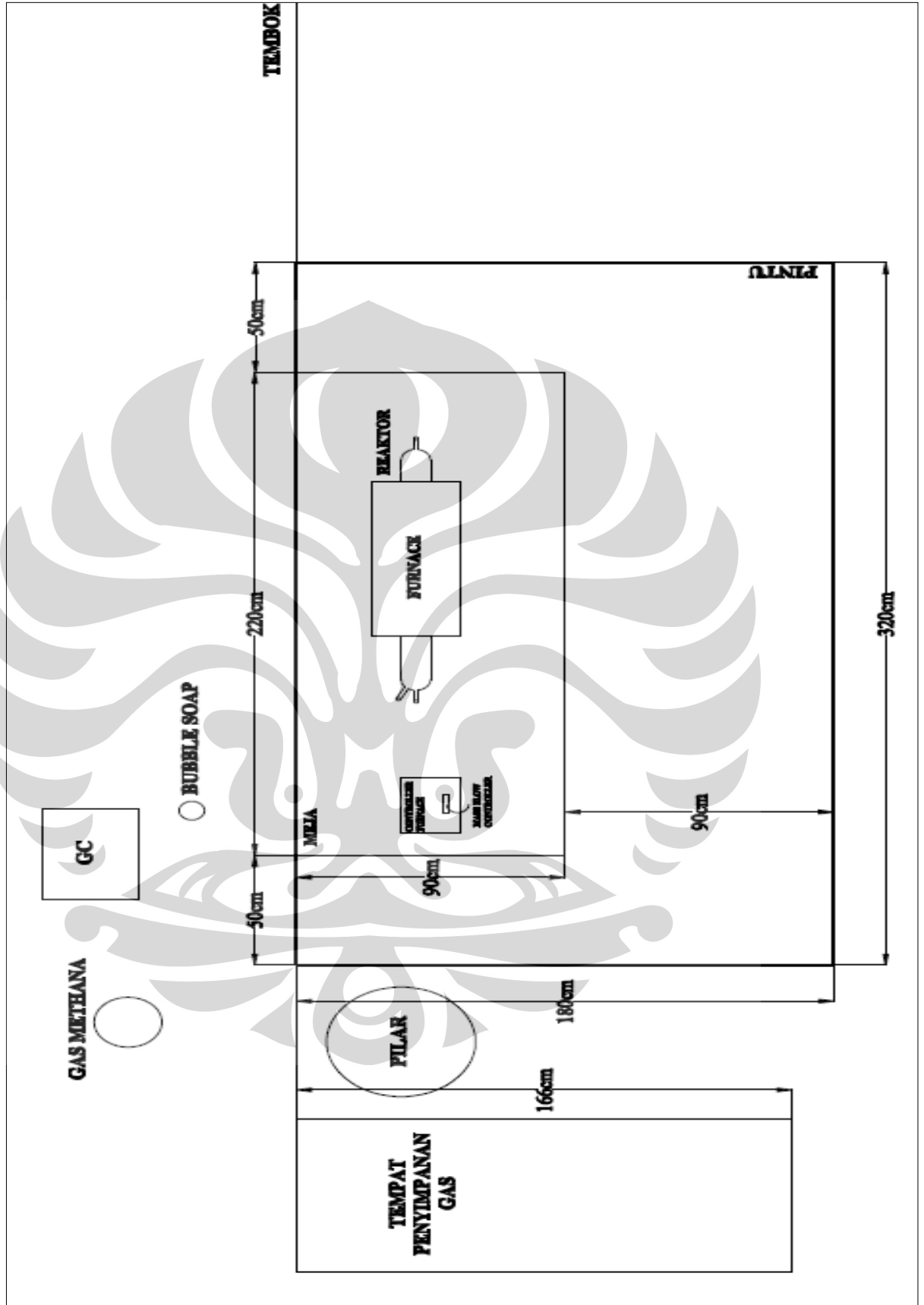
Rangkaian peralatan yang digunakan untuk produksi nanokarbon ini adalah tabung gas metana yang merupakan sumber gas yang digunakan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana disambung dengan sambungan T dengan tabung gas hidrogen untuk keperluan reduksi sebelum proses reaksi dimulai, disambungkan dengan *valve* untuk mengatur gas yang diinginkan saat proses produksi. Pipa *inlet* gas terhubung dengan check valve yang bertujuan untuk mencegah adanya aliran balik dan kemudian dihubungkan dengan *digital mass flow controller* tipe Sierra 1800MX seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.8a untuk menentukan laju alir gas yang masuk kemudian terhubung dengan *pressure gauge* sebagai *safety* instrumen yang digunakan untuk melihat tekanan yang ada pada reaktor selama proses reaksi. *Pressure gauge* terhubung dengan reaktor yang berada di dalam *digital tube furnace*. Aliran keluaran disambungkan pada gas sampler yang dapat mengatur aliran keluar menuju vent (*discharge*) atau menuju *Gas Chromatography* (*charge*) seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.8 b. Bila menuju *vent*, maka gas produk dibuang ke luar laboratorium dengan aman. Sedangkan bila diteruskan ke GC, maka dapat diambil data *peak* yang terdeteksi serta *peak area* masing-masing komponen. *Vent* juga dapat disambungkan secara berkala pada *soap bubbler* yang berfungsi untuk mengetahui laju alir keluaran. Tata letak rangkaian penelitian yang kami lakukan dapat dilihat pada Gambar 4.9. Lokasi penelitian berada pada lapangan parkir motor DTK FTUI.



Gambar 4.8a Set-up Rangkaian Reaktor Samping Kiri



Gambar 4.8b Set-up Rangkaian Reaktor Samping Kanan



Gambar 4.9 Layout Penelitian Secara Keseluruhan

4.2. Preparasi dan Karakterisasi Katalis

Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni, Cu, dan Al. Preparasi katalis dilakukan dengan melarutkan $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ke dalam air deionisasi sehingga garam-garam nitrat tersebut larut dalam air dan membentuk ionnya. Setelah seluruh garam nitrat larut dalam air, maka ditambahkan asam sitrat yang berfungsi sebagai agen pengompleks yang berpengaruh terhadap pattern dan hasil nanokarbon. Proses pelarutan dilakukan dengan menggunakan *hot plate* pada suhu 80°C selama 1 jam dan *magnetic stirrer* bertujuan untuk mempercepat proses pelarutan seperti pada Gambar 4.10.

Target katalis dalam perhitungan stoikiometrik kebutuhan prekursor katalis adalah katalis Ni/Cu/Al dengan komposisi 2:1:1. Komposisi didasarkan pada studi literature dimana komposisi katalis terbaik untuk katalis Ni/Cu/Al adalah 2:1:1 baik dari jumlah karbon yang didapat maupun dari kualitas karbon yang dihasilkan (Li, Yongdan., 2000; Chen, 2001)

Katalis yang akan digunakan untuk penelitian ini adalah katalis dengan komposisi Ni: Cu: Al = 3:2:1. Kebutuhan prekursor nitrat untuk preparasi larutan sol-gel ini dihitung secara stoikiometrik. Metode *sol-gel* digunakan dalam penelitian ini sebagai teknik preparasi katalis karena mempunyai keuntungan, antara lain stabilitas termal yang tinggi, tahanan pelarut yang tinggi, dan stabilitas mekanik yang tinggi.

Tabel 4.1 Komposisi Atomik / Molar Katalis

| Unsur | At/mole % berdasarkan XRF | At/mole % yang diinginkan |
|-------|---------------------------|---------------------------|
| Ni | 52,99 | 50 |
| Cu | 31,26 | 25 |
| Al | 15,75 | 25 |



Gambar 4.10 Larutan *sol-gel* katalis

Kemudian dari larutan yang telah dibuat, diambil sebagian sebagai sampel untuk karakterisasi katalis seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.11 a dan b. Setelah dikalsinasi dan dihaluskan menjadi bentuk serbuk, dilakukan karakterisasi XRF (*X-Ray Fluorescence*) untuk mengetahui komposisi fraksi Ni:Cu:Al, menggunakan alat JEOL Element Analyzer JSX-3211. Data yang diperoleh berupa unsur yang terdeteksi, persen berat, persen atom/mol, rasio-K, integral int, serta deviasi standar. Berikut hasil karakterisasi XRF yang didapatkan dari analisis sampel larutan. Hasil analisa XRF dapt dilihat pada lampiran C.

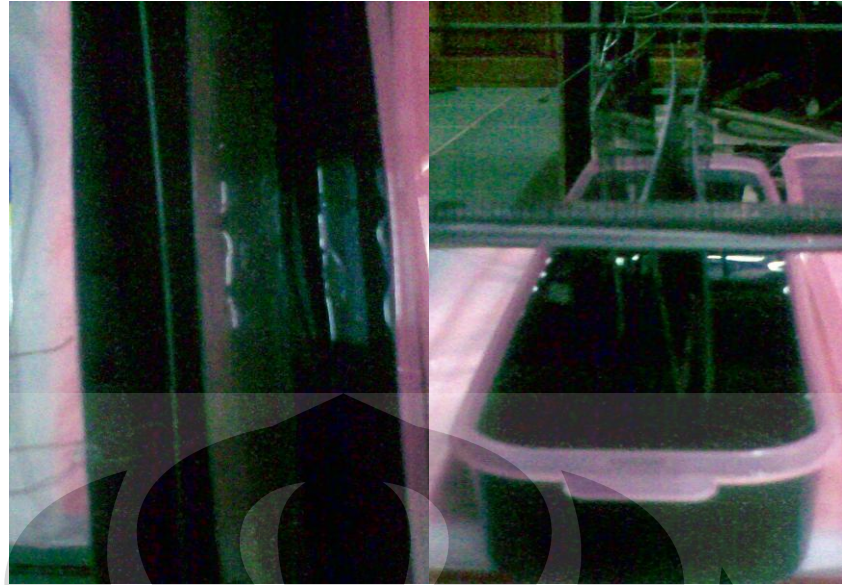


Gambar 4.11 a Larutan *sol-gel* katalis untuk sampel **b**. Sampel Karakterisasi XRF

4.3. Pelapisan Katalis pada Pelat Sejajar

Pada penelitian ini akan dilakukan pelapisan katalis pada dua konfigurasi pelat sejajar sebagai substrat katalis. Konfigurasi pelat I digunakan untuk uji kinerja reaktor selama 20 menit dan konfigurasi pelat II digunakan untuk pengujian aktivitas katalis selama 6 jam. Sebelum dilakukan pelapisan dengan menggunakan larutan *sol-gel* katalis, pelat *stainless steel* dibersihkan terlebih dahulu dengan menggunakan aseton untuk menghilangkan zat-zat pengotor yang menempel pada pelat tersebut dan kemudian direndam dengan larutan asam nitrat 0,5M selama 5 menit. Hal ini bertujuan untuk mengkasarkan permukaan pelat sehingga larutan katalis dapat menempel pada permukaan pelat. Kemudian pelat dikeringkan dengan menggunakan digital furnace selama 1 jam pada suhu 130⁰C untuk menghilangkan kandungan larutan asam dan juga aseton di dalam pelat sehingga pelat yang akan dilapisi katalis dalam keadaan kering dan dicatat sebagai W_0 .

Pelapisan larutan *sol-gel* katalis pada substrat pelat dilakukan dengan metode *dip-coating*. Pertama kali substrat pelat dicelupkan ke dalam wadah yang berisi larutan *sol-gel* katalis selama 30 menit dan pastikan semua permukaan pelat terendam sempurna sehingga terbentuk lapisan film tipis pada permukaan pelat. Setelah 30 menit maka substrat pelat diangkat dengan menggunakan integrator dengan kecepatan konstan yaitu 1mm/detik seperti ditunjukkan pada Gambar 4.12. Kecepatan pengangkatan yang konstan bertujuan agar larutan terlapis secara merata pada permukaan pelat.

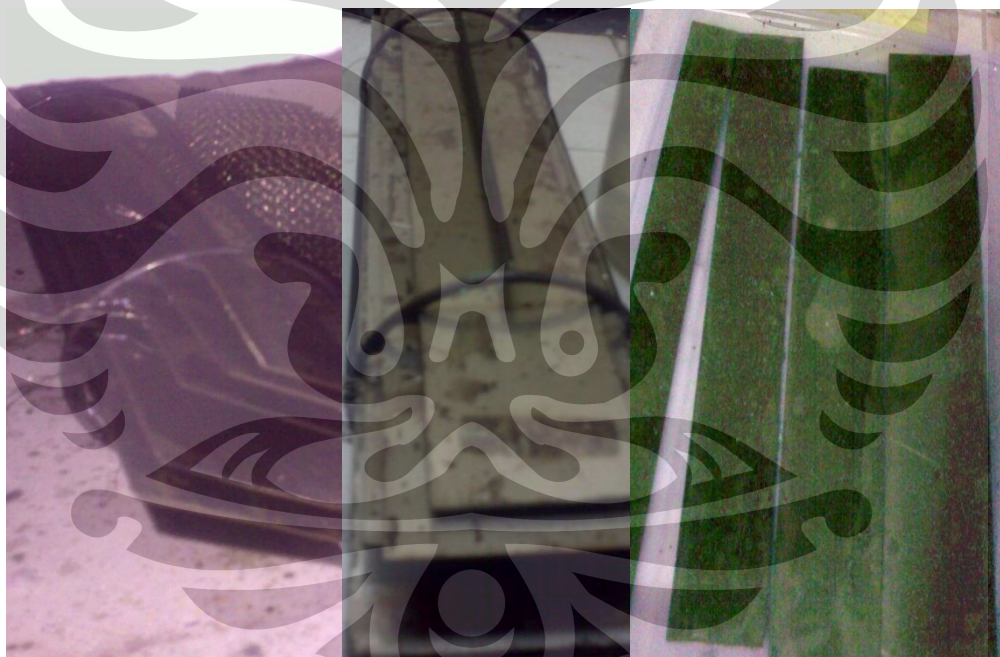


Gambar 4.12 Pengangkatan Substrat dengan Integrator

Setelah seluruh permukaan pelat terangkat dari dalam wadah, maka konfigurasi pelat dikeringkan dengan menggunakan *digital furnace* pada suhu 130°C selama satu jam. Hal ini bertujuan untuk menghilangkan kandungan air yang terdapat pada lapisan film tersebut. Pada Gambar 4.13 dapat dilihat bahwa terdapat katalis pada permukaan pelat setelah pengeringan. Setelah pengeringan selesai, maka konfigurasi pelat ditimbang kembali dengan berat W_1 . Kemudian dilakukan pencelupan pada larutan sol-gel kembali hingga didapatkan loading katalis maksimum yang dapat dicapai. Dalam pelaksanaannya pelapisan dilakukan sebanyak 4 kali yaitu W_1 , W_2 , W_3 , dan W_4 dengan berat katalis seperti pada Tabel 4.2. Hal ini dikarenakan kenaikan loading katalis pada W_3 menuju W_4 kurang signifikan sehingga dianggap pada keadaan itulah telah didapatkan loading katalis yang maksimal.

Tabel 4.2 *Loading* Katalis pada Substrat

| | Konfigurasi pelat I | Konfigurasi pelat II |
|---|---------------------|----------------------|
| W_0 (g) | 991,66 | 985,43 |
| W_1 (g) | 993,57 | 988,71 |
| W_2 (g) | 994,36 | 990,08 |
| W_3 (g) | 994,64 | 990,54 |
| W_4 (g) | 994,14 | 990,43 |
| $T_{\text{kalsinasi}}$ ($^{\circ}\text{C}$) | 700 | 700 |
| W_5 (g) | 993,65 | 987,35 |
| $W_5 - W_0$ (g) | 1,99 | 1,92 |
| A_{wiremesh} (cm^2) | 2938,98 | 2938,98 |
| W/A (g/cm^2 wiremesh) | 0,000677 | 0.000653 |

**Gambar 4.13** Pengeringan Pelat

Berdasarkan Tabel 4.2 maka didapatkan *loading* katalis per satuan luas untuk masing-masing konfigurasi pelat. *Loading* katalis tersebut merupakan banyaknya gram katalis yang terdapat pada permukaan pelat per satuan luas. Lapisan katalis ini merupakan luas permukaan aktif sebagai tempat terjadinya pertumbuhan nanokarbon.

Proses terakhir setelah didapatkan *loading* katalis maksimal adalah kalsinasi. Kalsinasi dilakukan untuk menjaga lapisan film katalis yang telah terbentuk pada pelat lebih kuat, tidak mudah rontok, dan struktur morfologi katalis tidak berubah meskipun katalis tidak langsung digunakan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana. Kalsinasi dilakukan dengan menggunakan digital furnace pada suhu 700°C . Pada penelitian didapatkan bahwa berat katalis setelah kalsinasi (W_5) lebih kecil daripada W_4 . Hal ini dikarenakan seluruh sisa air yang masih tersisa dari proses pengeringan menguap seluruhnya dan ada sebagian katalis yang rontok yang menandakan bahwa kualitas pelapisan katalis masih kurang baik.

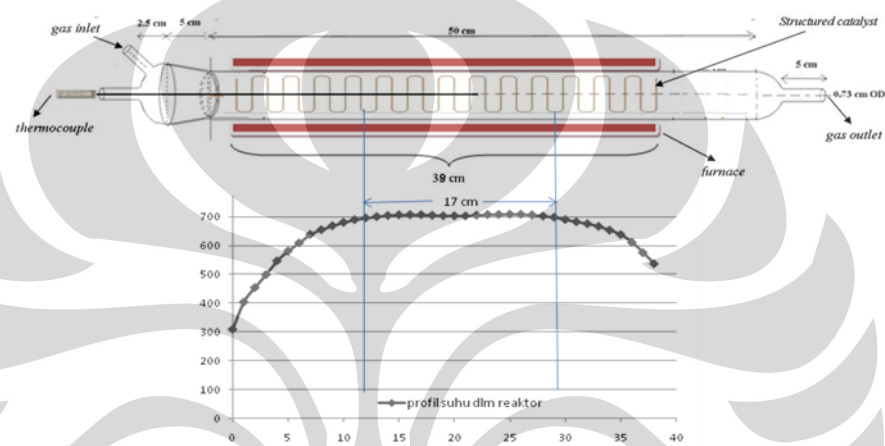
4.4. Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Sejajar Selama 20 menit.

Uji kinerja reaktor ini dilakukan selama 20 menit. Tujuan dari pengujian ini adalah untuk mendapatkan konversi metana tertinggi yang terjadi pada awal reaksi. Sebelum dilakukan reaksi dengan menggunakan gas metana, dialirkan gas hidrogen terlebih dahulu. Hal ini bertujuan untuk mereduksi NiO, CuO, dan Al_2O_3 yang terbentuk saat kalsinasi pada proses pelapisan katalis sehingga didapatkan komponen Ni, Cu, dan Al sesuai dengan yang kita inginkan untuk reaksi. Proses reduksi dimaksudkan untuk menghilangkan oksida yang terbentuk sehingga ukuran inti aktif katalis menjadi lebih kecil dan diameter nanokarbon yang terbentuk menjadi lebih kecil. Kebutuhan volume gas hidrogen untuk proses produksi adalah 5 liter yang dihitung dengan stoikiometrik dari oksida maksimal yang dapat diikat oleh partikel Ni selama proses preaparsi katalis terstruktur tersebut. Oleh karena itu pada percobaan dialirkan gas hidrogen dengan laju alir 15 L/hr selama 20 menit. Proses reduksi dilakukan setelah suhu *furnace* mencapai 700°C

Proses reaksi dekomposisi katalitik metana pada percobaan ini dilakukan pada tekanan atmosferik, suhu 700°C , dan laju alir gas metana yang digunakan adalah 42 L/hr. Hasil keluaran dari reaktor berupa gas dialirkan secara *online* ke GC untuk mengetahui komposisinya dengan data *peak area* yang diberikan. Gas yang terdeteksi adalah hidrogen sebagai produk utama proses dekomposisi metana, serta metana yang tidak bereaksi dan ikut terbuang ke aliran keluaran.

Sedangkan hasil berupa karbon (fasa solid) akan terdeposisi pada katalis terstruktur dalam reaktor.

Katalis terstruktur pelat ditempatkan pada jarak 12 cm dari bagian depan *furnace* seperti terlihat pada Gambar 4.14 dan pada Gambar 4.15 penempatan katalis terstruktur berada pada posisi 12 cm dari bagian depan *furnace*. Hal ini bertujuan untuk mendapatkan suhu yang tepat 700°C pada waktu reaksi. Posisi ini didapatkan dari profil suhu dalam reaktor yang dilakukan oleh Dwi.Y, 2009 didapatkan hasil sebagai berikut:



Gambar 4.14 Profil Suhu pada Reaktor Dwi Y, 2009



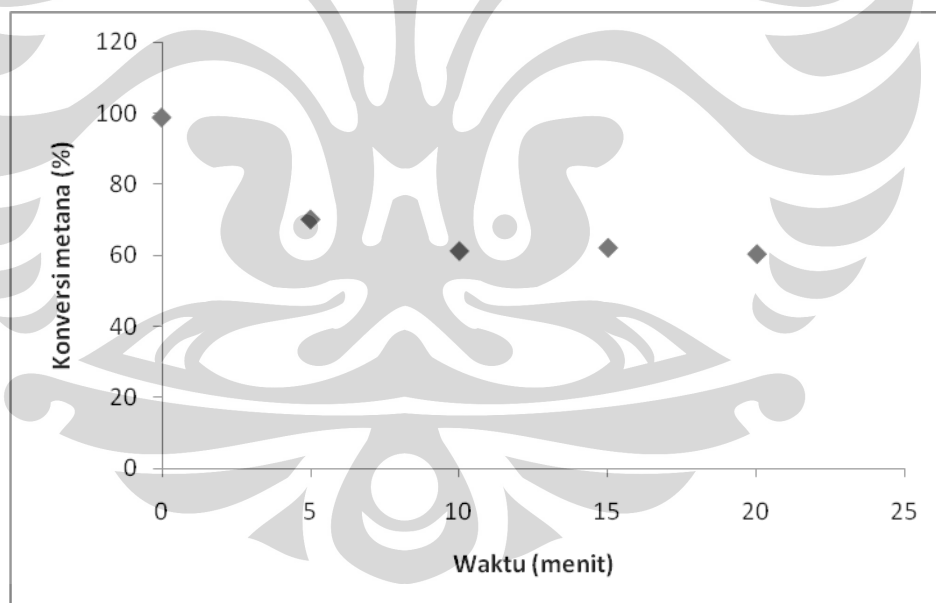
Gambar 4.15 Posisi Penempatan Katalis Terstruktur Pelat

4.4.1. Konversi Metana

Konversi metana menunjukkan seberapa banyak metana yang terkonversi menjadi produk dengan perhitungan menggunakan Persamaan 3.1. Produk-produk berupa gas dapat dideteksi dari GC. Selama penelitian, gas yang dideteksi oleh GC terdiri dari dua *peak* yaitu hidrogen dan metana. Hal ini dapat dilihat dari *peak* yang keluar pada hasil print out GC. Hal ini berarti proses dalam reaktor

katalis terstruktur tidak menghasilkan produk sampingan berupa karbon monoksida maupun karbon dioksida.

Pada pengujian kinerja reaktor selama 20 menit didapatkan profil konversi metana seperti pada Gambar 4.16, bahwa konversi metana tertinggi yang didapatkan yaitu 70,16%. Kemudian pada menit berikutnya konversi metana cenderung menurun hingga 62,28%. Konversi metana maksimal terjadi pada awal reaksi. Hal ini dikarenakan permukaan inti aktif katalis yang akan mengadsorpsi reaktan belum tertutup nanokarbon. Konversi semakin menurun karena sebagian permukaan katalis telah tertutup oleh produk nanokarbon sehingga kontak antara reaktan dengan substrat pelat tersebut semakin berkurang. Pertumbuhan nanokarbon menutup pori-pori katalis dan akan menghalangi difusi internal katalis (difusi reaktan dari mulut pori melewati pori katalis ke permukaan pelat). Pada titik $t=0$ Gambar 4.17 dapat kita lihat bahwa konversi metana mencapai 98%. Hal ini dikarenakan adanya gas hidrogen sisa hasil proses reduksi, karena $t=0$ dimulai sesaat setelah aliran metana dinyalakan dan aliran hidrogen dimatikan.

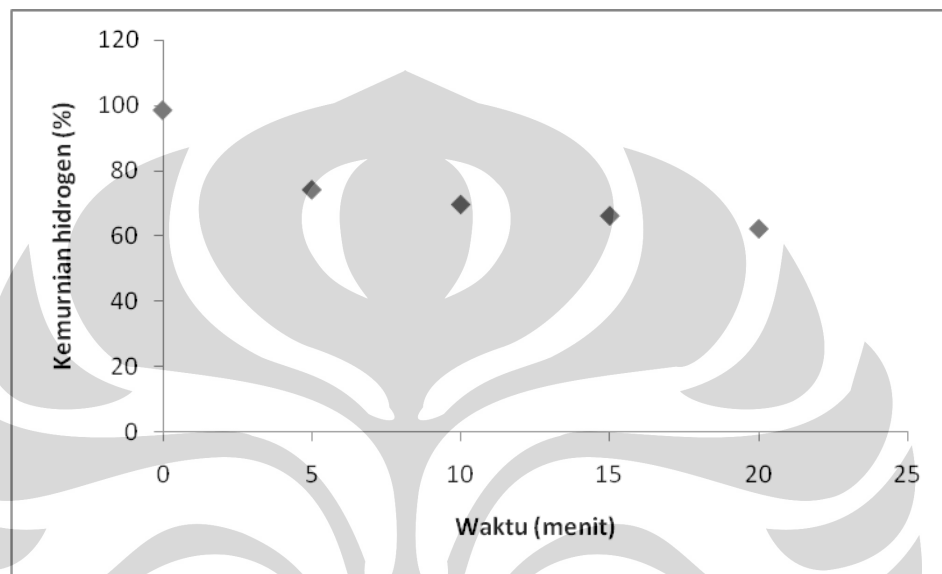


Gambar 4.16 Profil Konversi Metana pada Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Sejajar Selama 20 menit

4.4.2. Kemurnian Hidrogen

Kemurnian hidrogen adalah rasio antara volume gas hidrogen pada keluaran terhadap volume total gas keluaran. Parameter ini dapat menentukan berapa banyak hidrogen yang terbentuk. Oleh karena itu, nilai kemurnian hidrogen berbanding lurus dengan konversi metana. Pada Gambar 4.17 dapat

dilihat bahwa kemurnian hidrogen tertinggi terdapat pada lima menit reaksi yaitu 74,29% dan menurun hingga 62,28% pada menit ke-20. Parameter kemurnian hidrogen ini menunjukkan banyaknya produk utama yaitu gas hidrogen yang dihasilkan dari reaksi dekomposisi katalitik metana dengan katalis terstruktur pelat sejajar ini. Pada penelitian gas hidrogen yang terbentuk hanya divent ke udara bebas.

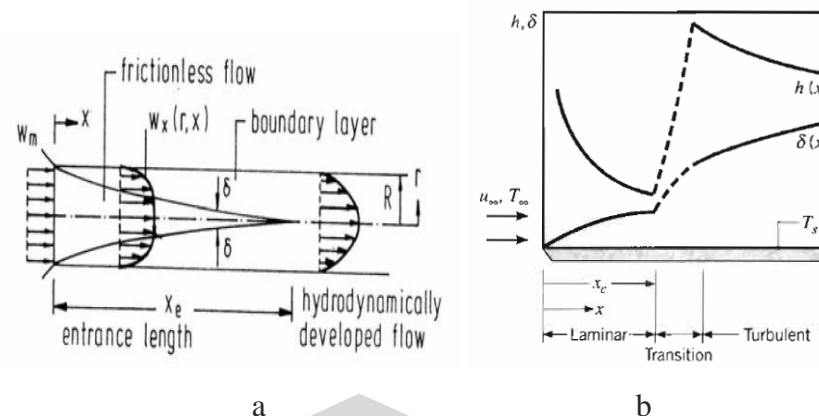


Gambar 4.17 Profil Kemurnian Hidrogen pada Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Sejajar Selama 20 menit

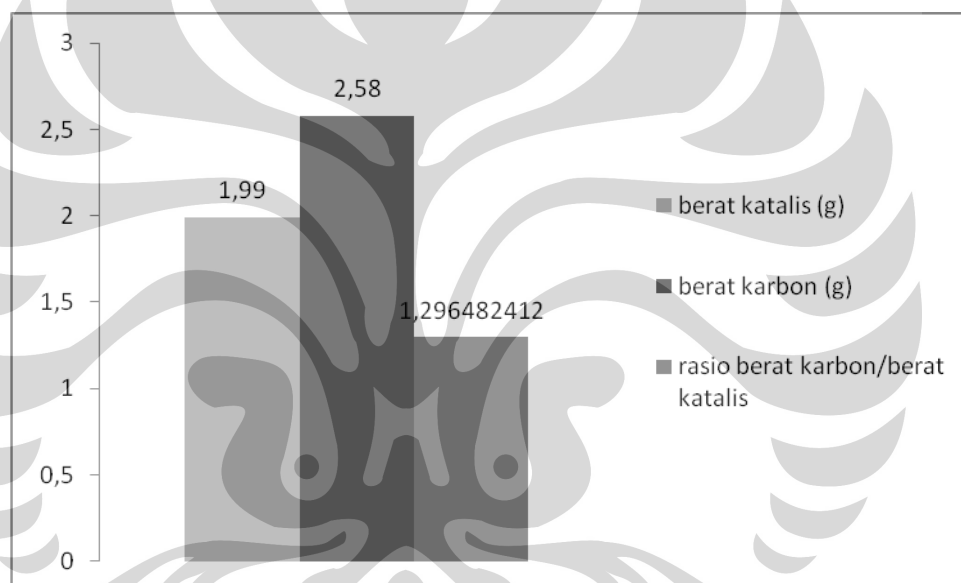
4.4.3. Yield Karbon

Yield karbon adalah banyaknya karbon yang terbentuk per berat katalis yang terpakai. Dari penelitian, didapatkan bahwa untuk proses reaksi selama 20 menit maka didapatkan yield karbon sebanyak 2,58 gram atau hanya 1,3 gram karbon per gram katalis (Gambar 4.19). Setelah reaksi dihentikan dan hasilnya diamati, dapat dilihat bahwa belum seluruh permukaan katalis terstruktur pelat sejajar tertutup karbon.

Fenomena pertumbuhan karbon terjadi pada bagian belakang pelat terlebih dahulu. Hal ini diduga disebabkan oleh perbedaan pola aliran pada pelat tersebut seperti dapat dilihat pada Gambar 4.18 a dan b. Adanya kecenderungan terjadi turbulensi pada bagian belakang pelat karena terbentuknya lapisan batas turbulen sehingga koefisien perpindahan massa pada bagian belakang pelat semakin besar, maka produk karbon tumbuh pada bagian belakang terlebih dahulu.



Gambar 4.18 (a) Pola Aliran pada Pelat Datar; (b) Grafik Ketebalan Boundary Layer dan Koefisien Perpindahan Massa pada Aliran Laminar dan Turbulen

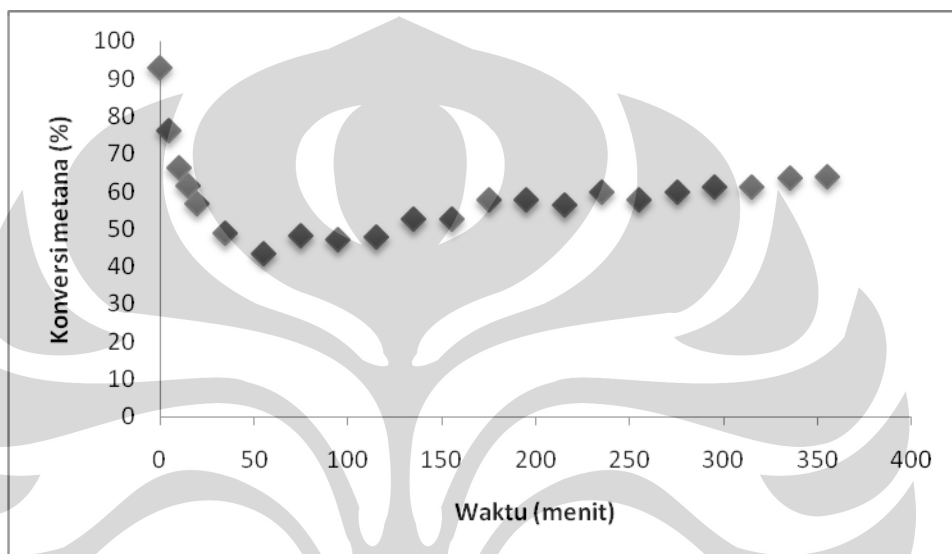


Gambar 4.19 Grafik Yield karbon Setelah 20 Menit Reaksi

4.5. Uji Aktivitas Reaktor Katalis Terstruktur selama 6 jam

Percobaan selanjutnya dilakukan uji aktivitas katalis. Tujuan dari percobaan ini adalah untuk mengetahui aktivitas dan stabilitas katalis dalam proses dekomposisi katalitik metana dan waktu yang diperlukan untuk mencapai kestabilan konversi metana. Pada percobaan ini juga dilakukan reduksi dengan menggunakan hidrogen dengan laju alir 40 L/hr selama 15 menit. Percobaan dilakukan pada tekanan atmosferik, suhu reaksi 700°C dan laju alir masuk metana 42 L/hr. Pengambilan data dilakukan setiap 5 menit selama 20 menit pertama dan setiap 20 menit setelah reaksi 20 menit.

Berdasarkan percobaan yang telah dilakukan selama 6 jam, maka didapatkan bahwa konversi metana dari 76,15 % menurun terus hingga menit ke-55 yaitu 46,06% dan naik pada menit ke-95 sebesar 47,28% kemudian meningkat dan setelah menit ke 235 ini konversi metana yang didapatkan cenderung stabil dengan konversi 59,90%. Hal ini berarti katalis terstruktur pelat masih aktif selama 355 menit dan konversi metana yang dihasilkan pada waktu tersebut cenderung stabil.

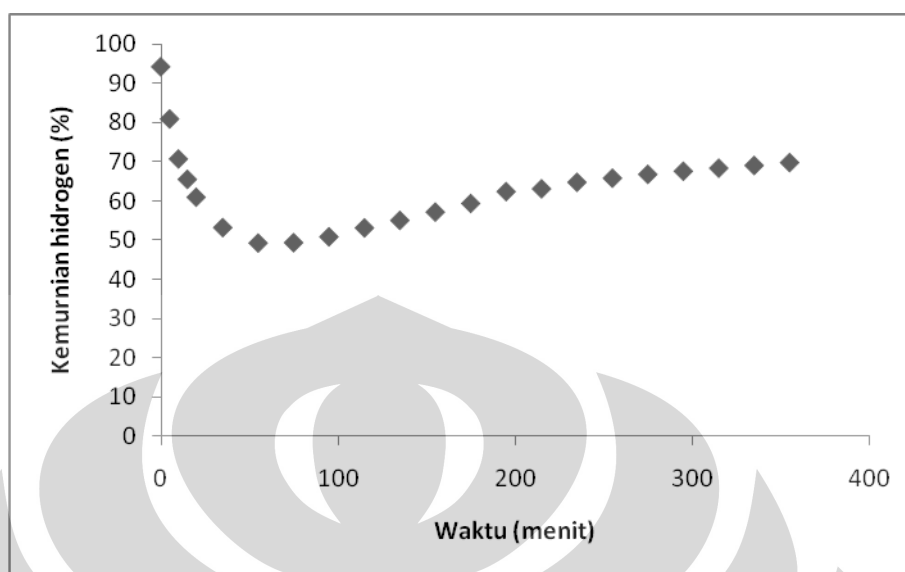


Gambar 4.20 Grafik Profil Konversi Metana Pada Uji Aktivitas

Berdasarkan gambar 4.20 dapat dilihat bahwa terjadi kenaikan konversi metana selama enam jam reaksi. Hal ini dikarenakan aliran gas reaktan menumbuk nanokarbon yang telah terbentuk selama reaksi menyebabkan terjadinya turbulensi aliran yang mengakibatkan koefisien perpindahan massa yang semakin tinggi sehingga konsentrasi reaktan semakin besar dan laju reaksi semakin besar. Oleh karena itu, dapat dilihat fenomena yang terjadi pada saat percobaan adalah pertumbuhan nanokarbon pada bagian belakang terlebih dahulu dan seiring dengan bertambahnya waktu reaksi maka terjadi pertumbuhan nanokarbon pada bagian depan pelat.

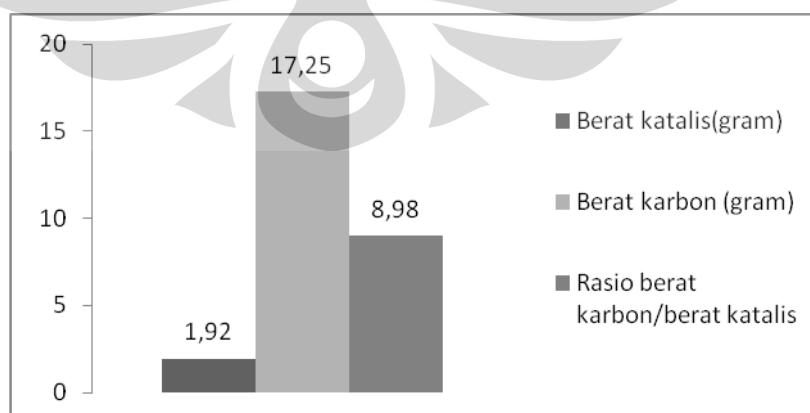
Kemurnian hidrogen yang didapatkan pada percobaan ini juga sebanding dengan konversi metana. Kemurnian hidrogen seperti terlihat pada Gambar 4.21 didapatkan bahwa pada menit ke-5 adalah 61,03% dan kemudian menurun hingga 49,37% pada menit ke-55 dan naik kembali menuju 49,45% pada menit ke-75.

Kemurnian hidrogen ini naik terus hingga mencapai angka 69,84 % pada menit ke 355. Berikut adalah gambar profil kemurnian hidrogen selama 355 menit reaksi.



Gambar 4.21 Grafik Profil Kemurnian Hidrogen pada Uji Aktivitas

Yield karbon yang didapatkan dengan loading katalis sebanyak 1,92 gram adalah 17,25 gram karbon sesuai dengan Gambar 4.22. Berarti, rasio berat produk per berat katalis ($\frac{w_C}{w_{cat}}$) adalah 8,98 g C/ g cat. Rasio ini masih cukup kecil dan kurang efektif untuk produksi nanokarbon dalam jumlah besar. Maka dalam hal ini perlu dilakukan evaluasi dari proses preparasi pelapisan katalis pada pelat sehingga didapatkan loading katalis yang lebih besar, menambah jumlah waktu reaksi sehingga didapatkan jumlah karbon yang lebih banyak, dan menambah laju alir gas metana yang merupakan sumber gas pada reaksi dekomposisi katalitik metana ini.



Gambar 4.22 Grafik Yield Karbon Pada Uji Aktivitas

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1. KESIMPULAN

Dari penelitian ini, kesimpulan yang dapat diambil adalah:

1. Perancangan reaktor katalis terstruktur pelat ini dibuat dengan dimensi diameter 8 cm dan panjang 120 cm. Internal reaktor katalis terstruktur pelat sejajar ini terdiri dari 7 buah pelat yang disusun sejajar dengan jarak antar pelat 6 mm dan konfigurasinya disatukan dengan menggunakan rak.
2. Loading katalis pada percobaan ini adalah $0,000677 \text{ gram/cm}^2$ untuk konfigurasi pelat 1 dan $0,000653 \text{ gram/cm}^2$ untuk konfigurasi pelat 2.
3. Berdasarkan uji aktifitas yang dilakukan selama 20 menit, maka didapatkan bahwa konversi metana tertinggi adalah 70,16% dengan kemurnian hidrogen 74,29%. Konversi metana tertinggi didapatkan pada awal reaksi.
4. Berdasarkan uji stabilitas yang dilakukan selama 6 jam, maka didapatkan bahwa konversi metana mengalami penurunan dari 76,15% menurun terus hingga menit ke-55 yaitu 46,06% dan naik pada menit ke-95 sebesar 48,21% kemudian meningkat terus hingga menit ke 235 yaitu 59,90% dan setelah menit ke 235 ini konversi metana yang didapatkan cenderung stabil maka pada menit ke 355.
5. Hasil yield karbon yang didapat untuk katalis terstruktur pelat 2,58 gram untuk 20 menit reaksi dan 17,25 gram untuk 355 menit reaksi.

5.2. SARAN

Untuk penelitian selanjutnya, peneliti menyarankan untuk memperpendek jarak sambungan pipa keluaran dan menggunakan pipa dengan diameter yang sama, tidak memerlukan *reducer* sehingga laju alir metana menjadi lebih besar.

DAFTAR PUSTAKA

- Beers, Annemarie E. W., et al.(2003). BEA Coating of Structured Supports – Performance in Acylation. *Applied Catalysis A: General*, vol. 243.
- Chakrabarti, Supriya, et al.(2006). Number of Walls Controlled Synthesis of Milimeter-Long Vertically Aligned Brushlike Carbon Nanotubes, *J. Phys. Chem. C*, 111,1929-1934.
- Chen J., Li Y., Ma Y., Qin Y., Chang L. Formation of Bamboo-Shaped Carbon Filaments and Dependence of Their Morphology on Catalyst Composition and Reaction Conditions. *Carbon* 2001; 39:1467-1475.
- Chen, Jiuling, Li, Yongdan, Zongquan, Li, Zhang, Xixiang. Production of Cox-free hydrogen and nanocarbon by direct decomposition of undiluted methane on Ni-Cu-alumina catalysts. Elsevier: *General* 269 (2004) 179-186.
- Daenan M, de Fouw RD, Hamers B, Janssen PGA, Schouteden K, Veld MAJ.(2003) Wondrous World of Carbon Nanotubes. Eindhoven University of Technology.
- Dai. Liming. (2006). *Carbon Nanotechnology*. Department of Materials and Chemical Engineering University of Dayton: USA.
- Ermakova, M. A. et al. New Nickel Catalyst for The Formation of Filamentous Carbon in The Reaction of Methane Decomposition. *Journal of Catalysis* 1999; 187:77-84.
- Ermakova, M. A. and D. Yu. Ermakova. (2002). Ni/SiO₂ and Fe/SiO₂ Catalysts for Production of Hydrogen and Filamentous Carbon via Methane Decomposition. *Catalysis Today*, 77, 225 – 235
- Gao, L.Z., Kiwi-Minsker, L., Renken, A. Growth of Carbon Nanotubes and Microfibers over Stainless Steel Mesh by Cracking of Methane. Elsevier 202(2008)3029-3042.
- Grujicic M, Cao G, Gersten B. (2002). An atomic-scale analysis of catalytically-assisted chemical vapor deposition of carbon nanotubes. *Materials Science and Engineering*; B94:247-259.
- Gullon IM, Vera J, Conesa JA, Gonzalez JL, Monino C. (2006). Differences between carbon nanofibers produced using Fe and Ni catalysts in a floating catalytic reactor. *Carbon*;xxx:xxx-xxx (Article in Press).

- He C, Zhao N, Shi C, Xiwen D, Li J.(2006). Carbon nanotubes and onions from methane decomposition using Ni/Al catalysts. *Materials Chemistry and Physics*; 97:109-115.
- Hou, P.X., S. Bai, Q.H. Yang, C. Liu dan H.M. Cheng. (2002), Multi-step purification of carbon nanotubes. *Carbon* 40 : 81-85.
- Huan Wang, Jiyun Feng, Xijun Hu, and Ka Ming Ng. (2007), Synthesis of Aligned Carbon Nanotubes on Double-Sided Metallic Substrate by Chemical Vapor Deposition. *J. Phys. Chem. C* , 111: 12617-12624.
- Ijima, S. (2002). Carbon Nanotubes:Past Present and Future. *Physica B*, 323, 1-5.
- Jiang, Q., Z.W. He, B.Du, X.F. Zhao, Y.Zhao. Effect of Citric Acid to Carbon Nanotube Growth. *Journal of Physics: Conference Series* 152 (2009) 011209.
- Li, Yongdan *et al.* (2000). Simultaneous Production of Hydrogen and Nanocarbon from Decomposition of Methane on a Nickel-Based Catalyst. *Energy & Fuels*, 14, 1188 – 1194.
- Morançais A, Causat B, Kihn Y, Kalck P, Plee D, Gaillard P, Bernard D et al. (2007). A parametric study of the large scale production of multi-walled carbon nanotubes by a fluidized bed catalytic chemical vapour deposition. *Carbon*, 45, 624-635.
- Muharam Y., Purwanto W.W., Afianty A. (2007), Uji kinerja reaktor katalitik terstruktur untuk reaksi dekomposisi katalitik metana, Laporan Riset Departemen Teknik Kimia UI
- Muharam Y., Purwanto W.W., Astika O.S. (2007), Pengaruh tekstural promoter pada kuantitas dan kualitas karbon naotube pada reaksi dekomposisi katalitik metana, Laporan Riset-Osaka Gas
- Muradov, N. (2001). Catalysis of Methane Decomposition over Elemental Carbon. *Catalysis Communication* 2, 89 – 94.
- Musso, Simone.(2007). Fluid Dynamics Analysis of Gas Flow in a Thermal-CVD System Design for Growth of Carbon Nanotubes. *Crystal Growth*, 310, 477-483.
- Nauman, E Bruce (2001). *Chemical Reactor, Design Reactor, Optimation, and Scale-up*. Rensselaer Polytechnic Institute Troy: New York.
- Purwanto W.W. (2005). Catalysis Role in Solving Future Energy Problems. Clean combustion, Hydrogen, Synthetic Fuels and Fuel Cells, *Berita Iptek LIPI* Tahun ke 44 Nomor 1 - Teknologi Katalisis dalam Penyediaan Energi.

- Purwanto W.W., M. Nasikin, E. Saputra, L. Song (2005). Decomposition of Methane to Produce NanoCarbon and Hydrogen with Ni-Cu-Al-Si as the Catalyst, *Prosiding Seminar Nasional Rekayasa Kimia dan Proses*, UNDIP Semarang.
- Purwanto W.W, E. Saputra, L. Song (2005). Utilization of very Small Field of Natural Gas by Methane Catalytic Decomposition. Effect of Nickel Catalyst Diameter and Acidity on Nanocarbon and Hydrogen Quality and Methane Activation, *Proceeding the International Energy Conference*, SCNCER, 7th Asean Science and Technology Weeks, Jakarta.
- Qian, Dong, et al. (2002). Mechanics of Carbon *Nanotubes*. *Applied Mechanics Rev*, vol. 55 no. 6, 495-533
- Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M.(2001). *Nanotubes*. *Chemphyschem* ;2:78-105.
- Song L.(2005) *Pengaruh keasaman katalis berbasis Ni-Cu terhadap kinerja reaksi dekomposisi katalitik metana menjadi hydrogen dan nanokarbon*. Skripsi. Departemen Teknik Gas dan Petrokimia FTUI
- Steinfeld A, A.Frei, P.Kuhn, D. Wuillemin. (1995). Solar Thermal Production of Zinc and Syngas Via Combined ZnO-Reduction and CH₄-Reforming Processes. *J. Hydrogen Energy*;20;10;793-804.
- Wan, Huang et al. (2007). Synthesis of Aligned Carbon Nanotubes on Double-Sided Metallic Substrate by Chemical Vapor Deposition. *J. Phys. Chem. C*,111. 12617-12624.
- Wang Y., F. Wei, G. Luo, H. Yu, G. Gu (2002). The large scale production of carbon nanotubes in a nano aglomerate fluidized bed reactor, *J. Phys. Chem. C*, 364, 568-572.
- Weizhong, Qian, et al. (2004). Production of Hydrogen and Carbon Nanotubes from Methane Decomposition in a Two-Stage Fluidized Bed Reactor. *Applied Catalysis*, 260, 223-228.
- Yulianti. I.(2007) *Perancangan Reaktor Katalis Terstruktur untuk Produksi Karbon Nanotube dan Hidrogen melalui Proses Dekomposisi Katalitik Metana*. Skripsi. Departemen Teknik Gas dan Petrokimia FTUI.
- Zhang, Ruth, et al (2002). Formation of Single-Walled Carbon Nanotubes via Reduced Pressure Thermal Chemical Vapor Decomposition. *J. Phys. Chem. C*,3137-3140.
- Anonim. Bilangan Prandtl. (1999) [diakses pada 20 Juni 2009]. Tersedia di: http://id.wikipedia.org/wiki/Bilangan_Prandtl.

Anonim. Bilangan Reynold. (1999) [diakses pada 20 Juni 2009]. Tersedia di: http://id.wikipedia.org/wiki/Bilangan_Reynolds.

Anonim. Nanoteknologi. (2008) [diakses pada 10 Februari 2009]. Tersedia di: http://www.kompas.com/index.php/read/xml/2008/05/17/15584879/na_noteknologi.dbd.

Anonim. *Nanotechnology and Government Strategies Worldwide*. (2003) [diakses pada 22 Maret 2009]. Tersedia di: <http://www.researchandmarkets.com/reports/37902>.



LAMPIRAN

A. Menghitung banyaknya pelat yang dibutuhkan

Luas katalis yang dibutuhkan = 2938.30 cm^2

Panjang pelat = 32 cm

Pelat yang digunakan dengan lebar yang berbeda-beda

Jarak antar pelat = 6 mm

Pelat yang dibutuhkan

Pelat dengan lebar 5,5 cm = $(2 \times 0.1 \times 32 + 2 \times 32 \times 5.5 + 2 \times 5.5 \times 0.1) \times 2 = 719 \text{ cm}^2$

Pelat dengan lebar 6,4 cm = $(2 \times 0.1 \times 32 + 2 \times 32 \times 6.4 + 2 \times 6.4 \times 0.1) \times 2 = 834.56 \text{ cm}^2$

Pelat dengan lebar 7,0 cm = $(2 \times 0.1 \times 32 + 2 \times 32 \times 7.0 + 2 \times 7.0 \times 0.1) \times 2 = 911,6 \text{ cm}^2$

Pelat dengan lebar 7,3 cm = $2 \times 0.1 \times 32 + 2 \times 32 \times 7.3 + 2 \times 7.3 \times 0.1 = 475.06 \text{ cm}^2$

Total luas pelat = 2940.22 cm^2

B. Menghitung Kebutuhan Katalis

Menghitung kebutuhan katalis yang diperlukan

Perbandingan mol Ni : Cu : Al = 2 : 1 : 1

Mr Ni = 58.60

Mr Cu = 63.546

Mr Al₂O₃ = 101.964

Mr campuran = $0.5 \times 58.60 + 0.25 \times 63.546 + 0.25 \times 101.964 = 70.6775$

n campuran = $5.1415 / 70.6775 = 0.0727$

Perbandingan mol Ni : Cu : Al₂O₃ = 0.03635 : 0.018175 : 0.018175

Mr Ni(NO₃)₂.6H₂O = 290.69

Mr Cu(NO₃)₂.3H₂O = 295.546

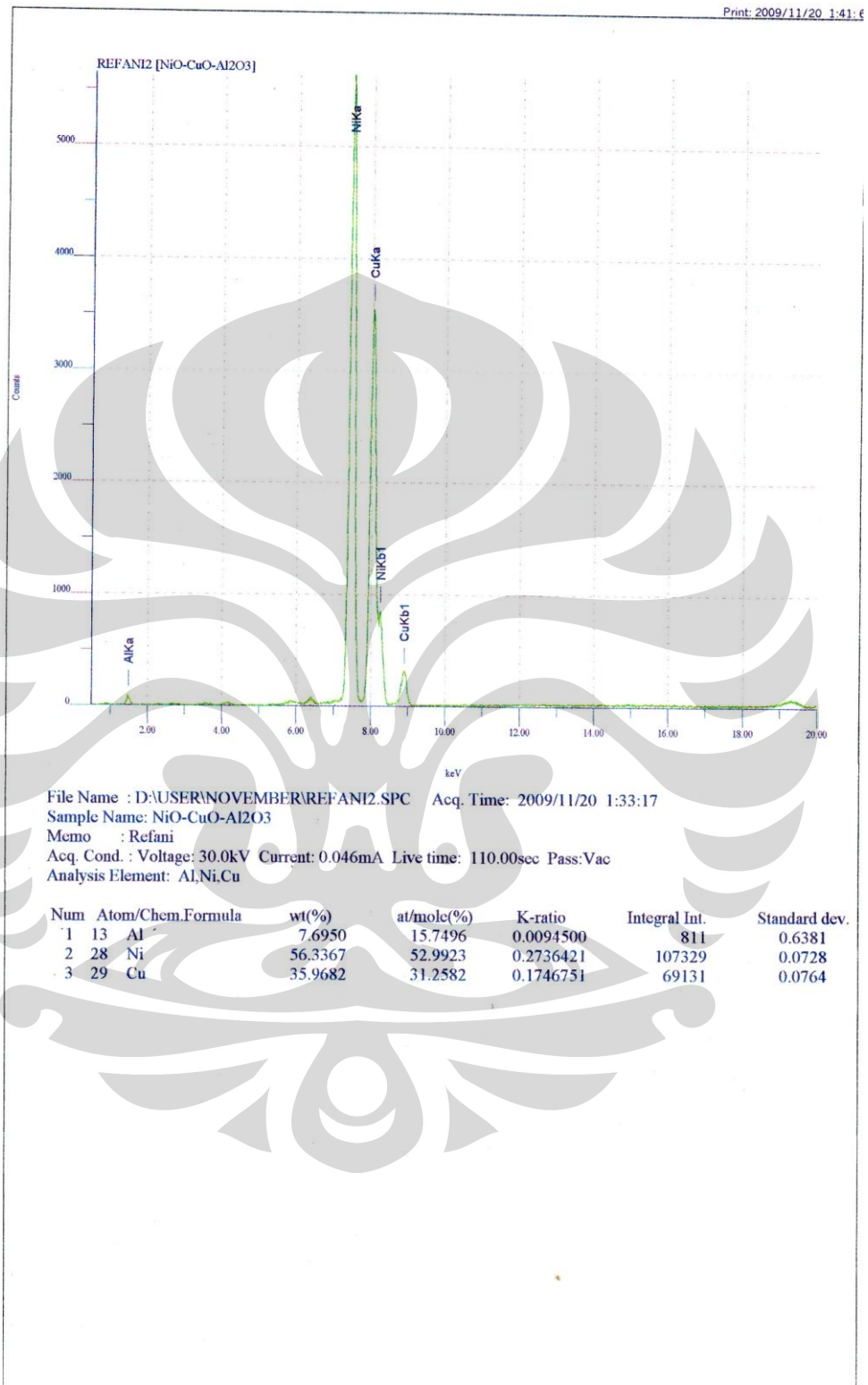
Mr Al(NO₃)₃.9H₂O = 326.982

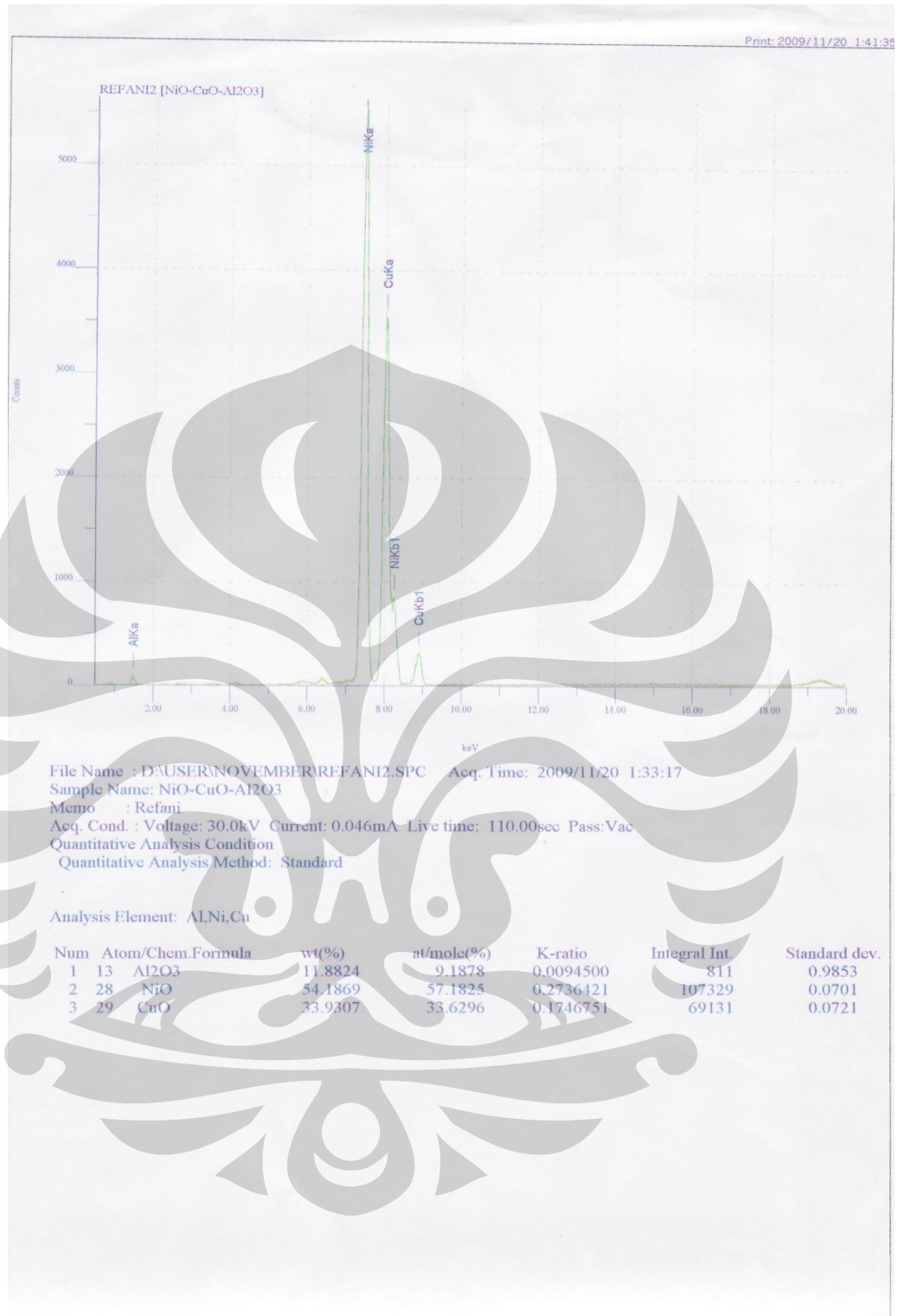
Perbandingan katalis yang dibutuhkan (dalam gram)

= Ni(NO₃)₂.6H₂O : Cu(NO₃)₂.3H₂O : Al(NO₃)₃.9H₂O

= 10.566 : 5.3715 : 11.8857

Hasil Karakterisas XRF



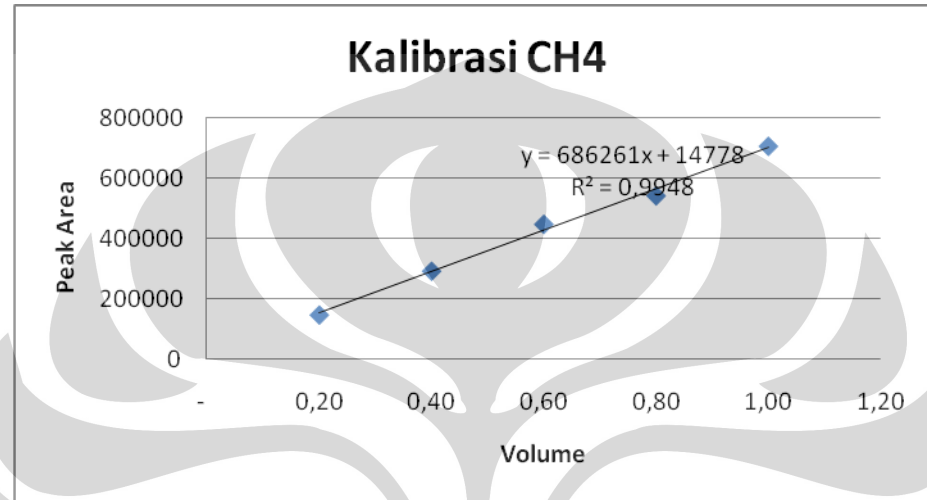


C. Hasil Kalibrasi

Temperatur INJ(Injection) = 130 °C
 Temperatur COL (kolom) = 100 °C

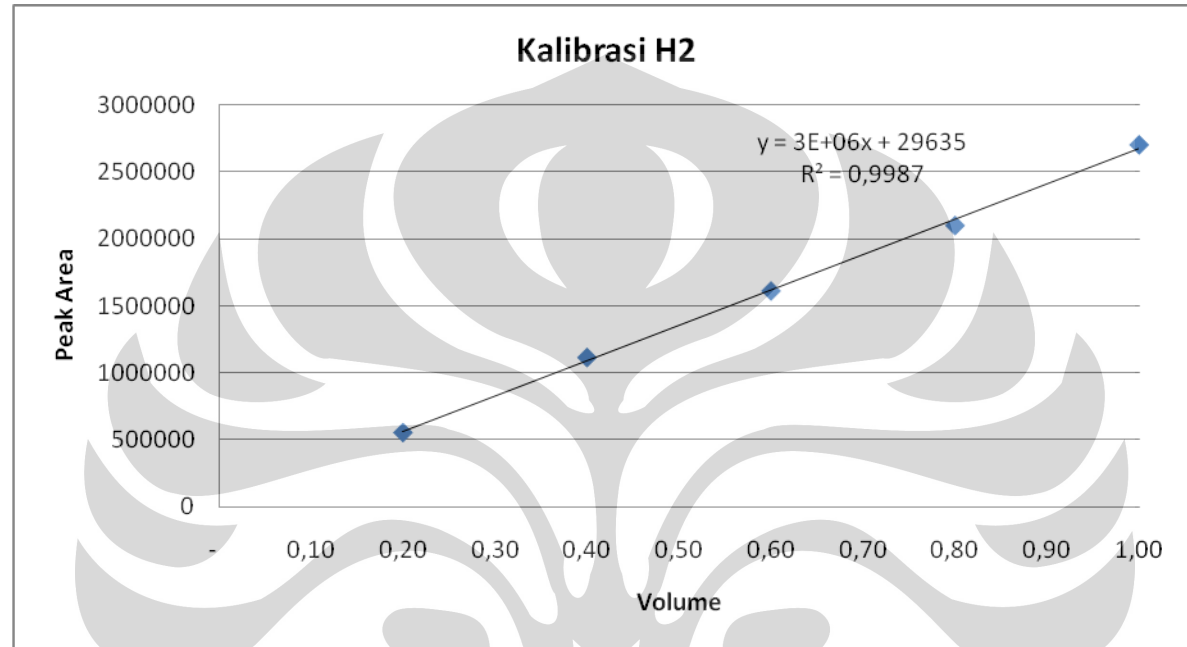
Kalibrasi CH₄

| Volume | Concentration | | | Retention Time | | | Peak Area | | | Mean | | |
|--------|---------------|---------|---------|----------------|-------|-------|-----------|--------|--------|---------------|----------------|-------------|
| | C1 | C2 | C3 | τ1 | τ2 | τ3 | PA1 | PA2 | PA3 | Concentration | Retention Time | Peak Area |
| 0,20 | 96,7454 | 96,6462 | 96,6275 | 1,595 | 1,603 | 1,605 | 152006 | 144897 | 140073 | 96,6730 | 1,601 | 145658,6667 |
| 0,40 | 97,2264 | 93,1796 | 96,9626 | 1,567 | 1,557 | 1,562 | 307282 | 270300 | 296320 | 95,7895 | 1,562 | 291300,6667 |
| 0,60 | 96,8614 | 97,2061 | 97,1156 | 1,548 | 1,538 | 1,543 | 451267 | 445865 | 444451 | 97,0610 | 1,543 | 447194,3333 |
| 0,80 | 90,1496 | 95,9566 | 97,9110 | 1,352 | 1,513 | 1,505 | 465562 | 564671 | 595471 | 94,6724 | 1,457 | 541901,3333 |
| 1,00 | 95,1340 | 96,0329 | 96,8421 | 1,478 | 1,490 | 1,483 | 703234 | 700318 | 716307 | 96,0030 | 1,484 | 706619,6667 |
| | | | | | | | | | | 96,0398 | 1,529 | 426534,9333 |



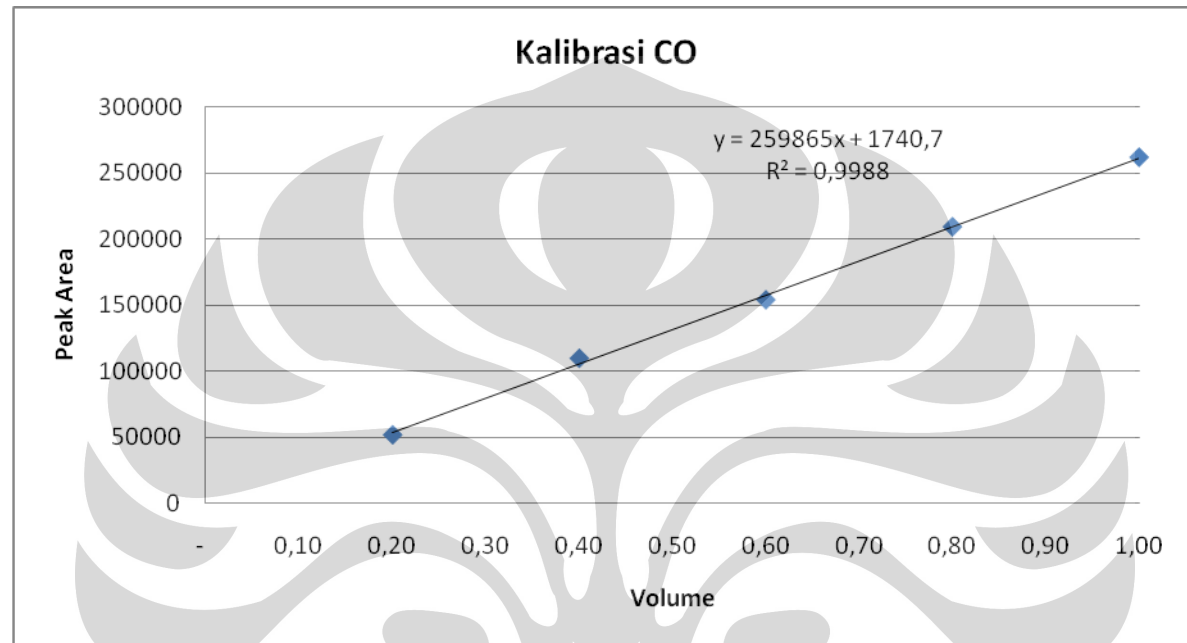
Kalibrasi H2

| Volume | Concentration | | | Retention Time | | | Peak Area | | | Mean | | |
|--------|---------------|----------|----------|----------------|----------|----------|-----------|---------|---------|---------------|----------------|--------------|
| | C1 | C2 | C3 | τ_1 | τ_2 | τ_3 | PA1 | PA2 | PA3 | Concentration | Retention Time | Peak Area |
| 0,20 | 99,7634 | 99,7281 | 99,8034 | 0,372 | 0,370 | 0,365 | 550977 | 555255 | 551462 | 99,7650 | 0,369 | 552564,6667 |
| 0,40 | 100,0000 | 99,9947 | 99,9983 | 0,393 | 0,403 | 0,400 | 1116268 | 1091501 | 1133337 | 99,9977 | 0,399 | 1113702,0000 |
| 0,60 | 100,0000 | 100,0000 | 100,0000 | 0,415 | 0,433 | 0,425 | 1595651 | 1627342 | 1610982 | 100,0000 | 0,424 | 1611325,0000 |
| 0,80 | 99,9888 | 100,0000 | 100,0000 | 0,408 | 0,417 | 0,417 | 2158487 | 2072560 | 2070695 | 99,9963 | 0,414 | 2100580,6667 |
| 1,00 | 99,9906 | 99,9901 | 99,9877 | 0,448 | 0,398 | 0,437 | 2887456 | 2587275 | 2636328 | 99,9895 | 0,428 | 2703686,3333 |
| | | | | | | | | | | 99,9497 | 0,407 | 1616371,7333 |



Kalibrasi CO

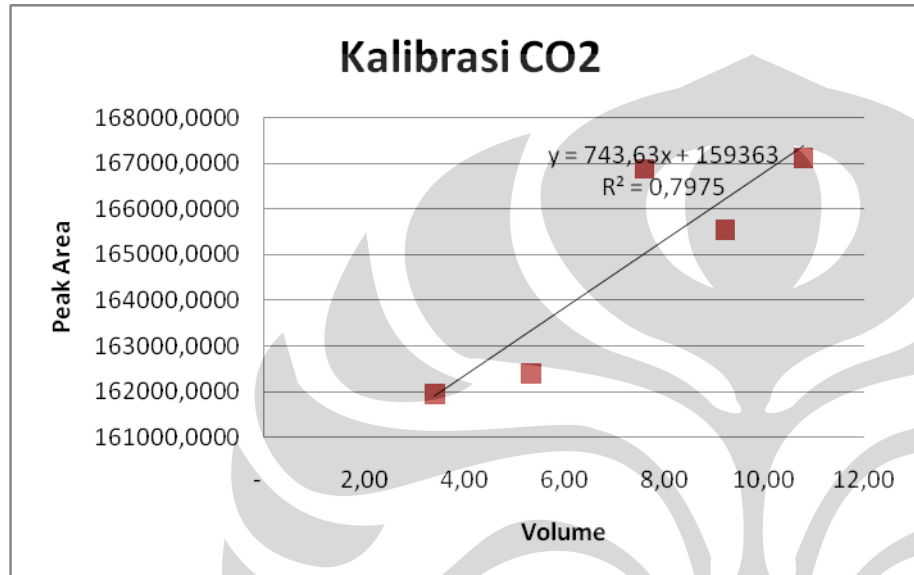
| Volume | Concentration | | | Retention Time | | | Peak Area | | | Mean | | |
|--------|---------------|---------|---------|----------------|----------|----------|-----------|--------|--------|---------------|----------------|-------------|
| | C1 | C2 | C3 | τ_1 | τ_2 | τ_3 | PA1 | PA2 | PA3 | Concentration | Retention Time | Peak Area |
| 0,20 | 90,0840 | 90,4767 | 90,2416 | 0,872 | 0,863 | 0,887 | 51022 | 52429 | 52834 | 90,2674 | 0,874 | 52095,0000 |
| 0,40 | 91,4933 | 96,1045 | 91,6717 | 0,867 | 0,870 | 0,847 | 108848 | 116282 | 105116 | 93,0898 | 0,861 | 110082,0000 |
| 0,60 | 90,5198 | 90,2098 | 90,6382 | 0,842 | 0,862 | 0,820 | 153739 | 154742 | 154480 | 90,4559 | 0,841 | 154320,3333 |
| 0,80 | 92,7767 | 92,7375 | 92,6233 | 0,845 | 0,825 | 0,833 | 211747 | 210111 | 206945 | 92,7125 | 0,834 | 209601,0000 |
| 1,00 | 93,2073 | 92,8072 | 92,5694 | 0,815 | 0,820 | 0,830 | 262784 | 260019 | 263799 | 92,8613 | 0,822 | 262200,6667 |



Kalibrasi CO2

| Flow (ml/min) | Flow Bubble Soap | | | | Volume | Concentration | | | Retention Time | | |
|------------------|------------------|-------|-------|---------|--------|---------------|---------|---------|----------------|----------|----------|
| | F1 | F2 | F3 | Average | | C1 | C2 | C3 | τ_1 | τ_2 | τ_3 |
| 40,00 | 21,43 | 20,07 | 20,11 | 20,54 | 3,42 | 97,1913 | 98,0463 | 98,2004 | 3,213 | 3,232 | 3,218 |
| 60,00 | | | | 32,068 | 5,34 | 97,4001 | 97,9064 | 98,1230 | 3,220 | 3,217 | 3,223 |
| 80,00 | 45,87 | 45,52 | 45,55 | 45,65 | 7,61 | 99,1436 | 99,1801 | 99,2037 | 3,163 | 3,225 | 3,222 |
| 100,00 | 55,87 | 54,74 | 55,38 | 55,33 | 9,22 | 99,3458 | 99,3479 | 99,3836 | 3,220 | 3,212 | 3,193 |
| 120,00 | 65,65 | 64,38 | 64,19 | 64,74 | 10,79 | 99,4798 | 99,4708 | 99,5021 | 2,967 | 2,960 | 2,963 |

| Peak Area | | | Mean | | |
|-----------|--------|--------|---------------|----------------|-------------|
| PA1 | PA2 | PA3 | Concentration | Retention Time | Peak Area |
| 160815 | 162202 | 162823 | 97,8127 | 3,221 | 161946,6667 |
| 161551 | 162271 | 163369 | 97,8098 | 3,220 | 162397,0000 |
| 170695 | 164896 | 165052 | 99,1758 | 3,203 | 166881,0000 |
| 165389 | 165313 | 165908 | 99,3591 | 3,208 | 165536,6667 |
| 167363 | 166413 | 167568 | 99,4842 | 2,963 | 167114,6667 |



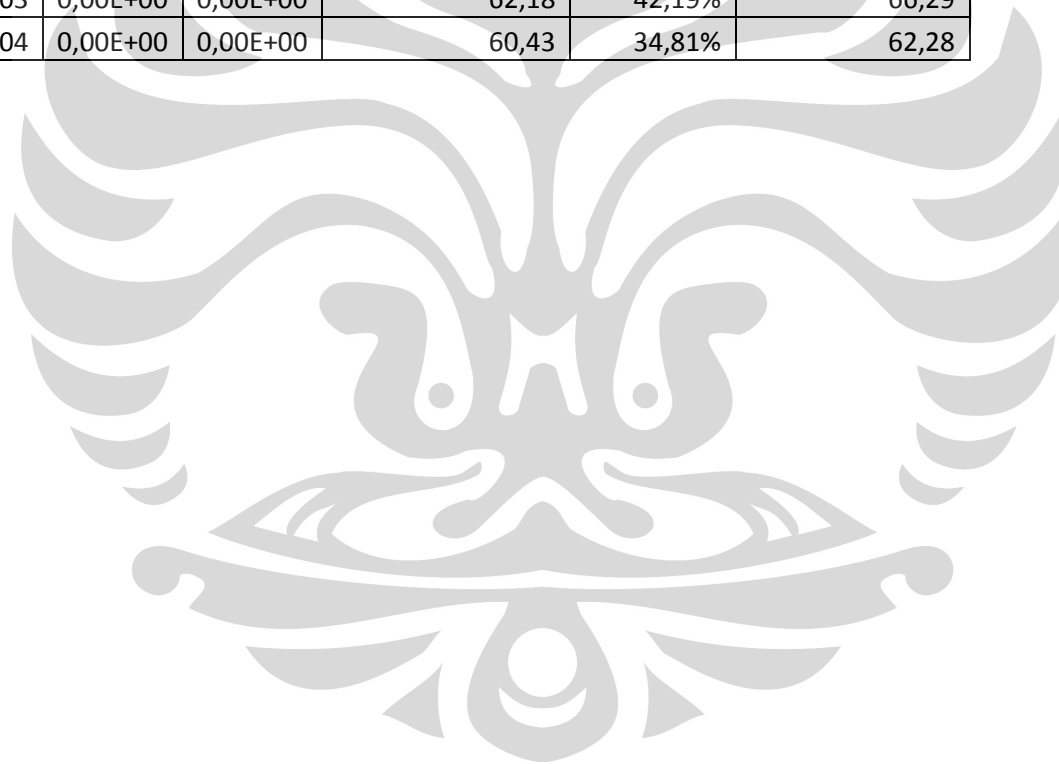
| Gas | Response Factor | RRF |
|-----|-----------------|------------|
| CH4 | 686261,00 | 1,00000000 |
| H2 | 3000000,00 | 4,37151463 |
| CO | 259865,00 | 0,37866788 |
| CO2 | 743,63 | 0,00108360 |

D. Hasil Uji Kinerja Reaktor Selama 20 Menit

| Waktu (menit) | Waktu (jam) | Volume bubble (ml) | Input | | Output | | Peak Area | | | |
|---------------|-------------|--------------------|---------------|-----------|----------------------|--------------|-----------|---------|----|-----|
| | | | flow (ml/min) | kmol/h | Waktu bubble (detik) | flow (m3/hr) | CH4 | H2 | CO | CO2 |
| 0 | 0 | 50 | 544,5 | 0,0013249 | 5,375 | 0,033488372 | 17516 | 1332865 | | |
| 5,00 | 0,083333333 | 50 | 435,87 | 0,0010606 | 5,94 | 0,03030303 | 241053 | 696458 | | |
| 10,00 | 0,166666667 | 50 | 433,76 | 0,0010555 | 5,413 | 0,033253279 | 263704 | 607913 | | |
| 15,00 | 0,25 | 50 | 555,78 | 0,0013524 | 4,82 | 0,037344398 | 279686 | 549878 | | |
| 20,00 | 0,333333333 | 50 | 524,54 | 0,0012763 | 5,46 | 0,032967033 | 293023 | 483907 | | |

| Komposisi gas (y, %) | | | | Volume (m3/h) | | | |
|----------------------|-------------|----|-----|---------------|-------------|----|-----|
| CH4 | H2 | CO | CO2 | CH4 | H2 | CO | CO2 |
| 0,012971154 | 0,987028846 | 0 | 0 | 0,000434383 | 0,033053989 | 0 | 0 |
| 0,257120183 | 0,742879817 | 0 | 0 | 0,007791521 | 0,02251151 | 0 | 0 |
| 0,302545728 | 0,697454272 | 0 | 0 | 0,010060638 | 0,023192642 | 0 | 0 |
| 0,337148189 | 0,662851811 | 0 | 0 | 0,012590596 | 0,024753802 | 0 | 0 |
| 0,377154956 | 0,622845044 | 0 | 0 | 0,01243368 | 0,020533353 | 0 | 0 |

| Out molar flow rate (kmol/h) | | | | Konversi CH4 (%) | Yield H2 (%) | Kemurnian H2 (%) |
|------------------------------|----------|----------|----------|------------------|--------------|------------------|
| CH4 | H2 | CO | CO2 | | | |
| 1,76456E-05 | 1,34E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 98,67 | 39,83% | 98,70 |
| 0,000316508 | 9,14E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 70,16 | 32,97% | 74,29 |
| 0,000408685 | 9,42E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 61,28 | 36,39% | 69,75 |
| 0,000511457 | 1,01E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 62,18 | 42,19% | 66,29 |
| 0,000505083 | 8,34E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 60,43 | 34,81% | 62,28 |



E. Data Uji Kinerja Reaktor Selama 355 menit

| Waktu (menit) | Waktu (jam) | Volume bubble (ml) | Input | | Output | | Peak Area | | | |
|---------------|-------------|--------------------|---------------|-----------|----------------------|---------------------------|-----------------|----------------|----|-----------------|
| | | | flow (ml/min) | kmol/h | Waktu bubble (detik) | flow (m ³ /hr) | CH ₄ | H ₂ | CO | CO ₂ |
| 0 | 0 | 50 | 698,76 | 0,0017003 | 3,55 | 0,050704225 | 73705 | 1198563 | | |
| 5,00 | 0,083333333 | 50 | 688,5 | 0,0016753 | 3,49 | 0,051575931 | 197313 | 837135 | | |
| 10,00 | 0,166666667 | 50 | 695,45 | 0,0016922 | 3,76 | 0,04787234 | 263202 | 637035 | | |
| 15,00 | 0,25 | 50 | 699,58 | 0,0017023 | 3,84 | 0,046875 | 287431 | 547679 | | |
| 20,00 | 0,333333333 | 50 | 681,3 | 0,0016578 | 3,98 | 0,045226131 | 306391 | 479751 | | |
| 35,00 | 0,583333333 | 50 | 667,5 | 0,0016242 | 4,1 | 0,043902439 | 337440 | 385107 | | |
| 55,00 | 0,916666667 | 50 | 669,01 | 0,0016279 | 4,03 | 0,044665012 | 362836 | 353738 | | |
| 75,00 | 1,25 | 50 | 700,01 | 0,0017033 | 4,19 | 0,042959427 | 365276 | 357339 | | |
| 95,00 | 1,583333333 | 50 | 688,67 | 0,0016757 | 4,06 | 0,044334975 | 358878 | 372749 | | |
| 115,00 | 1,916666667 | 50 | 678,9 | 0,001652 | 3,97 | 0,04534005 | 346228 | 393739 | | |
| 135,00 | 2,25 | 50 | 698,99 | 0,0017008 | 4,07 | 0,044226044 | 341824 | 419908 | | |
| 155,00 | 2,583333333 | 50 | 699,45 | 0,001702 | 3,88 | 0,046391753 | 333063 | 446060 | | |
| 175,00 | 2,916666667 | 50 | 699,35 | 0,0017017 | 4,13 | 0,043583535 | 320840 | 470176 | | |
| 195,00 | 3,25 | 50 | 689,75 | 0,0016784 | 3,86 | 0,046632124 | 295361 | 491223 | | |
| 215,00 | 3,583333333 | 50 | 677,89 | 0,0016495 | 3,73 | 0,048257373 | 304229 | 521777 | | |
| 235,00 | 3,916666667 | 50 | 699,43 | 0,0017019 | 3,77 | 0,047745358 | 293841 | 541322 | | |
| 255,00 | 4,25 | 50 | 677,53 | 0,0016486 | 3,57 | 0,050420168 | 297788 | 574400 | | |
| 275,00 | 4,583333333 | 50 | 688,98 | 0,0016765 | 3,61 | 0,049861496 | 293150 | 590710 | | |
| 295,00 | 4,916666667 | 50 | 699,81 | 0,0017028 | 3,58 | 0,05027933 | 292643 | 611623 | | |
| 315,00 | 5,25 | 50 | 699,54 | 0,0017022 | 3,49 | 0,051575931 | 289254 | 626570 | | |
| 335,00 | 5,583333333 | 50 | 699,01 | 0,0017009 | 3,64 | 0,049450549 | 285375 | 638201 | | |

| | | | | | | | | | | |
|--------|-------------|----|--------|-----------|------|-------------|--------|--------|--|--|
| 355,00 | 5,916666667 | 50 | 687,01 | 0,0016717 | 3,67 | 0,049046322 | 279263 | 646627 | | |
|--------|-------------|----|--------|-----------|------|-------------|--------|--------|--|--|

| Komposisi gas (y, %) | | | | Volume (m3/h) | | | |
|----------------------|-------------|----|-----|---------------|-------------|----|-----|
| CH4 | H2 | CO | CO2 | CH4 | H2 | CO | CO2 |
| 0,057931977 | 0,942068023 | 0 | 0 | 0,002937396 | 0,047766829 | 0 | 0 |
| 0,190742309 | 0,809257691 | 0 | 0 | 0,009837712 | 0,041738219 | 0 | 0 |
| 0,292369676 | 0,707630324 | 0 | 0 | 0,013996421 | 0,03387592 | 0 | 0 |
| 0,344183401 | 0,655816599 | 0 | 0 | 0,016133597 | 0,030741403 | 0 | 0 |
| 0,389740022 | 0,610259978 | 0 | 0 | 0,017626433 | 0,027599698 | 0 | 0 |
| 0,467014603 | 0,532985397 | 0 | 0 | 0,02050308 | 0,023399359 | 0 | 0 |
| 0,506348263 | 0,493651737 | 0 | 0 | 0,022616051 | 0,022048961 | 0 | 0 |
| 0,505491859 | 0,494508141 | 0 | 0 | 0,021715641 | 0,021243786 | 0 | 0 |
| 0,490520443 | 0,509479557 | 0 | 0 | 0,021747212 | 0,022587764 | 0 | 0 |
| 0,467896541 | 0,532103459 | 0 | 0 | 0,021214453 | 0,024125598 | 0 | 0 |
| 0,448745753 | 0,551254247 | 0 | 0 | 0,01984625 | 0,024379795 | 0 | 0 |
| 0,427484492 | 0,572515508 | 0 | 0 | 0,019831755 | 0,026559998 | 0 | 0 |
| 0,405604944 | 0,594395056 | 0 | 0 | 0,017677697 | 0,025905838 | 0 | 0 |
| 0,375498357 | 0,624501643 | 0 | 0 | 0,017510286 | 0,029121838 | 0 | 0 |
| 0,368313305 | 0,631686695 | 0 | 0 | 0,017773832 | 0,03048354 | 0 | 0 |
| 0,351836707 | 0,648163293 | 0 | 0 | 0,01679857 | 0,030946789 | 0 | 0 |
| 0,34142639 | 0,65857361 | 0 | 0 | 0,017214776 | 0,033205392 | 0 | 0 |

| | | | | | | | |
|-------------|-------------|---|---|-------------|-------------|---|---|
| 0,331670174 | 0,668329826 | 0 | 0 | 0,016537571 | 0,033323925 | 0 | 0 |
| 0,323624907 | 0,676375093 | 0 | 0 | 0,016271643 | 0,034007686 | 0 | 0 |
| 0,315840161 | 0,684159839 | 0 | 0 | 0,01628975 | 0,035286181 | 0 | 0 |
| 0,30898919 | 0,69101081 | 0 | 0 | 0,015279685 | 0,034170864 | 0 | 0 |
| 0,301615743 | 0,698384257 | 0 | 0 | 0,014793143 | 0,034253179 | 0 | 0 |

| Out molar flow rate (kmol/h) | | | | Konversi CH4 (%) | Yield H2 (%) | Kemurnian H2 (%) |
|------------------------------|----------|----------|----------|------------------|--------------|------------------|
| CH4 | H2 | CO | CO2 | | | |
| 0,000119323 | 1,94E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 92,98 | 61,25% | 94,21 |
| 0,000399629 | 1,70E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 76,15 | 65,03% | 80,93 |
| 0,000568565 | 1,38E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 66,40 | 60,64% | 70,76 |
| 0,000655382 | 1,25E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 61,50 | 59,58% | 65,58 |
| 0,000716024 | 1,12E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 56,81 | 56,78% | 61,03 |
| 0,00083288 | 9,51E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 48,72 | 54,60% | 53,30 |
| 0,000918713 | 8,96E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 43,56 | 57,08% | 49,37 |
| 0,000882136 | 8,63E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 48,21 | 52,55% | 49,45 |
| 0,000883419 | 9,18E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 47,28 | 55,96% | 50,95 |
| 0,000861777 | 9,80E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 47,83 | 58,23% | 53,21 |
| 0,000806198 | 9,90E-04 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 52,60 | 55,20% | 55,13 |
| 0,000805609 | 1,08E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 52,67 | 60,09% | 57,25 |
| 0,000718106 | 1,05E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 57,80 | 53,41% | 59,44 |

| | | | | | | |
|-------------|----------|----------|----------|-------|--------|-------|
| 0,000711306 | 1,18E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 57,62 | 59,63% | 62,45 |
| 0,000722012 | 1,24E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 56,23 | 63,10% | 63,17 |
| 0,000682394 | 1,26E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 59,90 | 61,57% | 64,82 |
| 0,000699302 | 1,35E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 57,58 | 67,18% | 65,86 |
| 0,000671792 | 1,35E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 59,93 | 65,62% | 66,83 |
| 0,000660989 | 1,38E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 61,18 | 66,27% | 67,64 |
| 0,000661725 | 1,43E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 61,12 | 68,81% | 68,42 |
| 0,000620694 | 1,39E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 63,51 | 64,11% | 69,10 |
| 0,00060093 | 1,39E-03 | 0,00E+00 | 0,00E+00 | 64,05 | 63,11% | 69,84 |

