

***SCALE-UP* REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR GAUZE  
SKALA PILOT UNTUK PRODUKSI HIDROGEN DAN  
NANOKARBON MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI  
KATALITIK METANA**

**SKRIPSI**

**FRANCY  
0606076394**



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

**SCALE-UP REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR GAUZE  
SKALA PILOT UNTUK PRODUKSI HIDROGEN DAN  
NANOKARBON MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI  
KATALITIK METANA**

**SKRIPSI**

**Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana**

**FRANCY  
0606076394**



**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 : Francy**

**NPM : 0606076394**

**Tanda Tangan :** 

**Tanggal : 17 Desember 2009**

## HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh

Nama : Francy

NPM : 0606076394

Program Studi : Teknik Kimia

Judul Skripsi : *Scale-up* Reaktor Katalis Terstruktur *Gauze* Skala Pilot untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik Kimia 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. Mahmud S., MSc., PhD

Penguji II : Ir. Dijan Supramono, MSc

()  
()  
()  
()

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 17 Desember 2009

## KATA PENGANTAR

Puji dan syukur penulis panjatkan kepada Tuhan YME atas karunia-Nya sehingga skripsi ini dapat diselesaikan. Skripsi dengan judul “*Scale-up* Reaktor Katalis Terstruktur *Gauze* Skala Pilot untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon Melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana” ini disusun dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Teknik jurusan Teknik Kimia pada Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Saya menyadari bahwa tanpa bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak, dari masa perkuliahan sampai pada penyusunan skripsi ini, sangat sulit bagi saya untuk menyelesaikan skripsi ini. Oleh karena itu, saya mengucapkan terima kasih kepada:

1. Tuhan Yang Maha Esa
2. Ir. Praswasti PDK Wulan, MT dan Dr. rer. nat. Yuswan Muharam, MT selaku dosen pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran untuk mengarahkan saya dalam penyusunan skripsi ini;
3. Prof. Dr. Ir. Widodo W.P., DEA selaku ketua Departemen Teknik Kimia FTUI dan pembimbing skripsi penulis;
4. Kang Jajat dan Mang Izal selaku teknisi laboratorium yang telah membantu saya secara teknis,
5. Orang tua dan keluarga saya yang telah memberikan bantuan dukungan material dan moral; dan
6. Sahabat yang telah banyak membantu saya dalam menyelesaikan skripsi ini: Refani, Dwi Yul, Shantya, Rizka, Estu, Herry, Anindya, dan Peter sebagai teman seperjuangan, dan juga kepada teman-teman lain yang tidak dapat disebutkan satu-persatu.

Akhir kata, saya berharap semoga semoga skripsi ini membawa manfaat bagi pengembangan ilmu pengetahuan kedepannya.

Depok, 17 Desember 2009

Penulis

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

---

---

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

Nama : Francy  
NPM : 0606076394  
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:

“*Scale-up* Reaktor Katalis Terstruktur *Gauze* Skala Pilot  
untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon  
melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana”

Beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalih media/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan mempublikasikan 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 : 17 Desember 2009

Yang menyatakan,



( Francy )

## ABSTRAK

Nama : Francy  
Program Studi : Teknik Kimia  
Judul : *Scale-up* Reaktor Katalis Terstruktur *Gauze* Skala Pilot untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

*Scale-up* reaktor katalis terstruktur *gauze* untuk memperoleh 1 kg/hari nanokarbon dengan prinsip *geometric similarity* menghasilkan laju alir metana 140 L/h, diameter reaktor 8 cm, panjang reaktor 32 cm, diameter *gauze* 0,64 mm, jumlah mesh/inch 10, dan luas permukaan katalis 2938,982 cm<sup>2</sup>. Penelitian ini bertujuan untuk memproduksi nanokarbon dan hidrogen dengan katalis terstruktur *gauze* melalui reaksi dekomposisi katalitik metana dengan katalis Ni-Cu-Al. Pada reaktor katalis terstruktur *gauze* ini dilakukan uji aktifitas selama 20 menit dan uji stabilitas selama 17 jam pada suhu 700°C. Untuk uji stabilitas dengan 20 L/jam metana, konversi metana tertinggi adalah 96,77% dan kemurnian hidrogen tertinggi adalah 97,46%. Yield karbon yang dihasilkan oleh 1,83 gram katalis adalah 170,36 gram karbon. Untuk uji aktivitas dengan laju alir metana 6 L/jam diperoleh konversi metana tertinggi adalah 76,1% dan kemurnian hidrogen tertinggi adalah 79,3%. Yield karbon yang dihasilkan oleh 1,81 gram katalis adalah 57,34 gram karbon. Dari hasil percobaan diperoleh bahwa kapasitas reaktor ini adalah 393,19 gram/hari.

**Kata kunci:** *scale-up*, reaksi dekomposisi katalitik metana, nanokarbon, hidrogen, katalis terstruktur *gauze*.

## ABSTRACT

Name : Francy  
Study Program : Chemical Engineering  
Title : Scale-up of gauze-type structural catalyst reactor to pilot scale to produce hydrogen and nanocarbon through catalytic decomposition of methane

Scale-up of gauze-type structural catalyst reactor to produce 1 kg/day nanocarbon by geometric similarity results in 140 L/h methane flow, 8 cm reactor diameter, 32 cm reactor length, 0,64 mm gauze diameter, 10 meshes/inch, and 2938,982 cm<sup>2</sup> catalyst surface area. The purpose of this experiment is to produce nanocarbon and hydrogen by gauze-type structural catalyst through catalytic decomposition of methane with Ni-Cu-Al catalyst. Two experiment that have already done are stability test for 17 hours and activity test for 20 minutes at 700°C. In stability test with 20 L/h methane flow, the highest conversion of methane is 96,77% and the highest hydrogen purity is 97,46%. Yield carbon that produced by 1,83 gram catalyst is 170,36 gram carbon. In activity test with 6 L/h methane flow, the highest conversion of methane is 76,1% and the highest hydrogen purity is 79,3%. Yield carbon that produced by 1,81 gram catalyst is 57,34 gram carbon. From the experiment, the production capacity of the reactor is 393,19 gram C/day.

**Keywords** : scale-up, catalytic decomposition of methane, nanocarbon, hydrogen, gauze structural catalyst.



## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
KATA PENGANTAR.....	iv
LEMBAR PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH.....	v
ABSTRAK.....	vi
ABSTRACT.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR.....	xi
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xiv
DAFTAR SINGKATAN.....	xv
DAFTAR NOTASI.....	xvi
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Rumusan Masalah.....	4
1.3 Tujuan Penelitian.....	4
1.4 Batasan Masalah.....	5
1.5 Sistematika Penulisan.....	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	7
2.1 Dekomposisi Katalitik Metana.....	7
2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana.....	8
2.2.1 Hidrogen.....	8
2.2.2 Nanokarbon.....	8
2.3 Karbon Nanotube.....	11
2.3.1 Jenis karbon nanotube.....	11
2.3.2 Sifat fisik karbon nanotube.....	11
2.3.3 Sintesis karbon nanotube.....	12
2.3.4 Aplikasi karbon nanotube.....	14

2.4 Mekanisme Pertumbuhan Karbon Nanotube.....	17
2.5 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	20
2.5.1 Katalis Ni-Cu-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	20
2.5.2 Pengaruh Komposisi Katalis.....	22
2.6 Deaktivasi Katalis.....	23
2.7 Reaktor untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	24
2.8 <i>Residence Time</i> .....	30
2.9 <i>Scale-up Factor</i> .....	31
2.10 <i>Scale-up</i> Reaktor.....	31
2.11. Bilangan Reynold.....	33
2.12 Teknik Preparasi Katalis dengan metode Sol-Gel.....	34
2.12.1. Preparasi Katalis terstruktur <i>gauze</i> .....	35
2.12.2. Pengaruh Asam Sitrat.....	36
2.13 Teknik Pelapisan <i>Dip-Coating</i> .....	37
<b>BAB III METODE PENELITIAN.....</b>	<b>39</b>
3.1 Diagram Penelitian.....	39
3.2 Alat dan Bahan.....	40
3.3 Prosedur Penelitian.....	40
<b>BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....</b>	<b>45</b>
4.1 <i>Scale-up</i> Reaktor Katalis Terstruktur <i>Gauze</i> .....	45
4.2. Preparasi dan Karakterisasi Katalis.....	54
4.3 Pelapisan Katalis pada <i>Gauze</i> .....	55
4.4. Uji Aktivitas Katalis Terstruktur <i>Gauze</i> .....	58
4.4.1. Konversi Metana.....	60
4.4.2. Kemurnian Hidrogen .....	61
4.4.3. Yield Karbon.....	62
4.5. Uji Stabilitas Katalis Terstruktur <i>Gauze</i> .....	64
4.5.1. Konversi Metana.....	64
4.5.2. Kemurnian Hidrogen.....	65
4.5.3. Yield Karbon.....	66
4.6. Kapasitas Produksi Reaktor Katalis Terstruktur <i>Gauze</i>	

Skala Pilot.....	67
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	69
5.1. Kesimpulan.....	69
5.2. Saran.....	70
DAFTAR PUSTAKA.....	71
LAMPIRAN.....	77



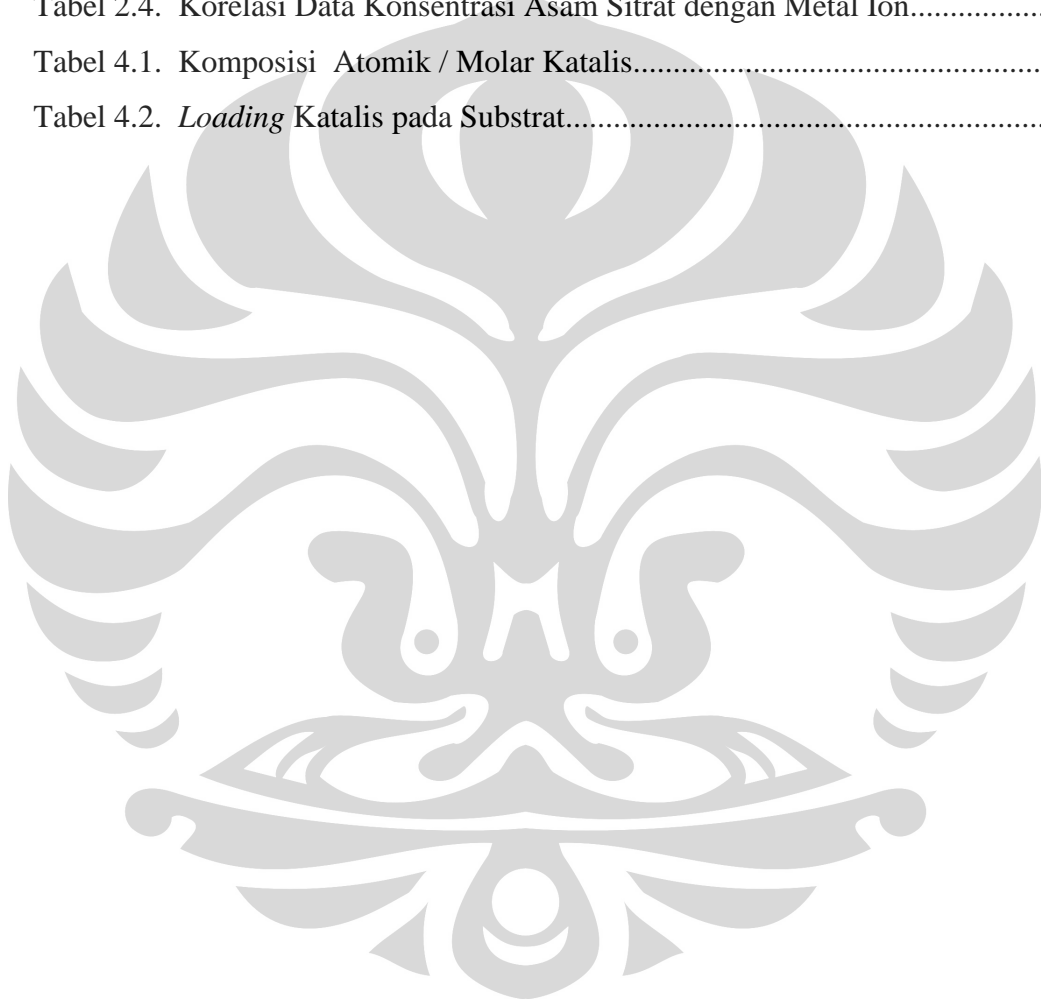
## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Beragam struktur nanokarbon.....	9
Gambar 2.2. Jenis karbon <i>nanotube</i> : (a) SWCNT, (b) MWCNT.....	11
Gambar 2.3. Skema <i>arch-discharge</i> .....	13
Gambar 2.4. Skema <i>Laser Ablation</i> .....	13
Gambar 2.5. Skema proses CVD.....	14
Gambar 2.6. Skema transistor CNT.....	16
Gambar 2.7 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana.....	17
Gambar 2.8 Mekanisme pembentukan nukleus pada pertumbuhan (a) karbon nanofilamen; (b) MWNT; dan (c) SWNT.....	19
Gambar 2. 9 Skema pertumbuhan CNT.....	20
Gambar 2.10. Kurva konversi metana dan konsentrasi hidrogen pada gas keluaran selama dekomposisi metana pada 1013 K untuk empat katalis berbeda.....	23
Gambar 2.11. <i>Spouted bed reactor</i> .....	24
Gambar 2.12. Sistem reaktor.....	25
Gambar 2.13. <i>Two-staged fluidized bed reactor</i> .....	26
Gambar 2.14. Skema <i>Fluidized Bed Reactor Semi</i> Kontinu Skala Pilot.....	27
Gambar 2.15. Dinding reaktor solar untuk produksi hidrogen dari perengkahan gas alam.....	28
Gambar 2.16. Prinsip Proses Solar.....	28
Gambar 2.17. (a) Substrat anyaman kawat ( <i>gauze</i> ) baja sebelum dan (b) setelah dibentuk. ....	28
Gambar 2.18. <i>Gauze</i> , reaktor katalis terstruktur (a) dan (b) setelah reaksi, (c) hasil karbon <i>nanotube</i> .....	29
Gambar 3.1. Diagram Alir Penelitian.....	36
Gambar 3.2. Bentuk katalis terstruktur.....	38
Gambar 3.3. Rangkaian Peralatan.....	42
Gambar 4. 1 Hasil rancangan reaktor katalis terstruktur skala laboratorium.....	45

Gambar 4.2. Tabung kuarsa.....	48
Gambar 4.3. Desain Reaktor Katalis Terstruktur.....	48
Gambar 4.4. <i>Seal</i> penutup reaktor.....	49
Gambar 4. 5. Profil temperatur dalam reaktor.....	49
Gambar 4.6. Desain <i>furnace</i> .....	50
Gambar 4.7. Desain <i>gauze</i> .....	50
Gambar 4.8. Rangkaian peralatan.....	51
Gambar 4.9. <i>Furnace</i> .....	51
Gambar 4.10. Rangkaian peralatan.....	51
Gambar 4.11. <i>Gas Chromatography</i> .....	51
Gambar 4.12. Denah Peralatan.....	53
Gambar 4.13. Larutan katalis.....	54
Gambar 4.14. Integrator untuk <i>Dip Coating</i> .....	56
Gambar 4. 15. Substrat setelah <i>dip-coating</i> dan pengeringan.....	56
Gambar 4. 16. Substrat setelah kalsinasi.....	57
Gambar 4.17. Katalis terstruktur <i>gauze</i> dalam <i>furnace</i> . .....	58
Gambar 4.18. Hubungan waktu terhadap konversi metana pada uji aktivitas reaktor katalis terstruktur <i>gauze</i> .....	60
Gambar 4.19. Efek turbulensi pada pola aliran.....	61
Gambar 4.20. Hubungan waktu terhadap kemurnian hidrogen pada uji aktivitas reaktor katalis terstruktur <i>gauze</i> .....	62
Gambar 4.21. <i>Gauze</i> setelah uji aktivitas.....	63
Gambar 4.22. Yield karbon setelah reaksi 20 menit.....	63
Gambar 4.23. Aliran metana ke dalam inti aktif katalis.....	65
Gambar 4.24. Hubungan waktu terhadap konversi metana pada uji stabilitas katalis terstruktur <i>gauze</i> .....	65
Gambar 4.25. Hubungan waktu terhadap kemurnian hidrogen pada uji stabilitas katalis terstruktur <i>gauze</i> .....	66
Gambar 4.26. <i>Gauze</i> setelah uji <i>lifetime</i> katalis.....	66
Gambar 4.27. Yield karbon setelah reaksi 17 jam.....	67

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1. Komposisi katalis dan hasilnya.....	22
Tabel 2.2. Rangkuman hasil penggunaan reaktor .....	30
Tabel 2.3. <i>Scale-up factor</i> untuk reaktor <i>tubular</i> .....	33
Tabel 2.4. Korelasi Data Konsentrasi Asam Sitrat dengan Metal Ion.....	37
Tabel 4.1. Komposisi Atomik / Molar Katalis.....	55
Tabel 4.2. <i>Loading</i> Katalis pada Substrat.....	57

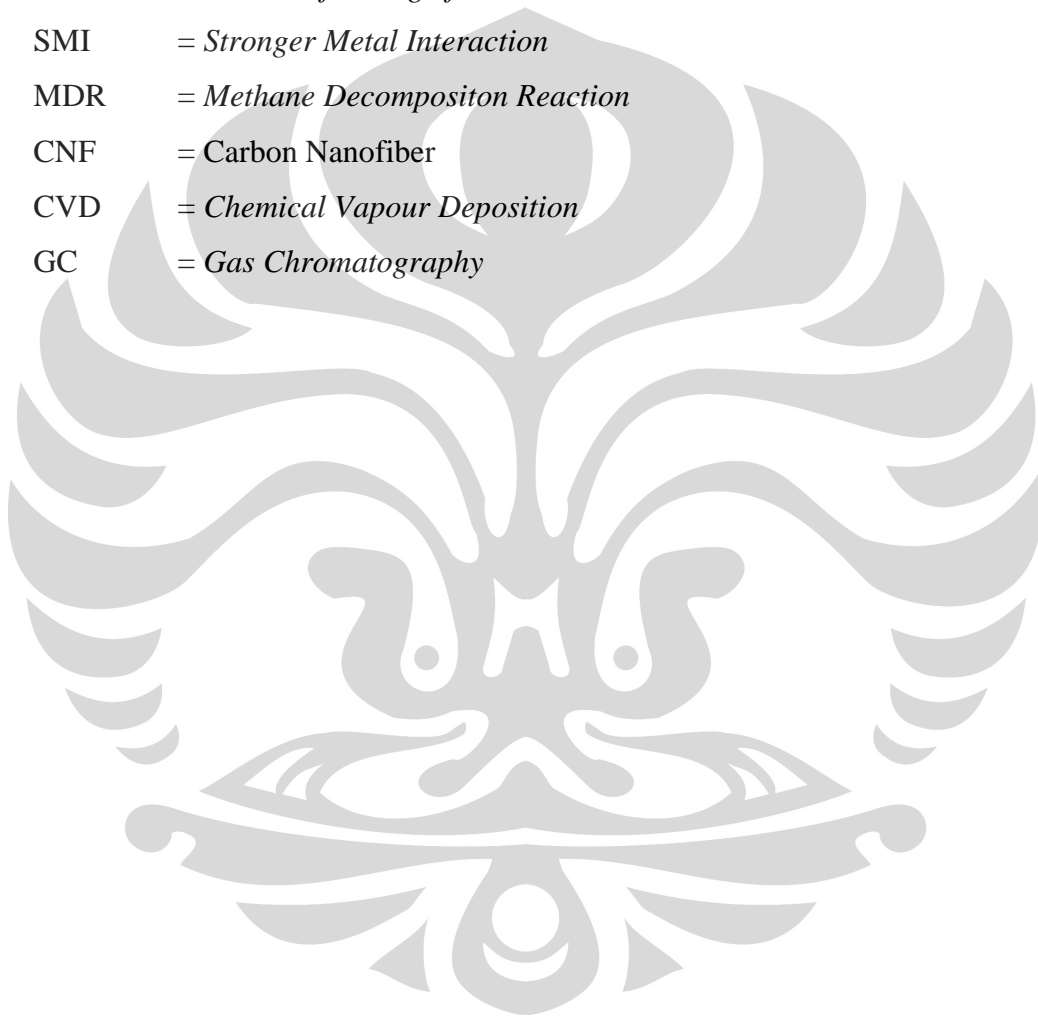


## DAFTAR LAMPIRAN

LAMPIRAN A. PENURUNAN RUMUS TABEL 2.3.....	77
A.1 <i>Scale-up</i> Diameter Reaktor.....	77
A.2 <i>Scale-up</i> Bilangan Reynold.....	77
A.3 <i>Scale-up</i> Koefisien Perpindahan Panas .....	77
A.4 <i>Scale-up</i> $\Delta P$ .....	78
A.5 <i>Scale-up</i> $A_{ext}$ reaktor .....	79
LAMPIRAN B. PERHITUNGAN <i>SCALE-UP</i> REAKTOR.....	80
B.1 Data Reaktor Skala Laboratorium (Yulianti, 2008).....	80
B.2 Menghitung <i>Scale-up</i> Rasio .....	80
B.3 Menghitung Laju Alir Metana .....	80
B.4 Menghitung Diameter dan Panjang Reaktor .....	80
B.5 Menghitung Diameter <i>gauze</i> .....	81
B.6 Menghitung luas katalis 2.....	82
B.7 Menghitung Panjang <i>Gauze</i> , Jumlah <i>Gauze Sheet</i> , dan <i>Separating Gap</i> yang Dibutuhkan.....	83
B.8 Menghitung Total Katalis yang Dibutuhkan.....	84
LAMPIRAN C. PERHITUNGAN KEBUTUHAN PREKURSOR KATALIS... 85	
LAMPIRAN D. HASIL KARAKTERISASI XRF.....	86
LAMPIRAN E. HASIL KALIBRASI <i>GAS CHROMATOGRAPHY</i> .....	88
LAMPIRAN F. HASIL UJI AKTIVITAS KATALIS.....	94
LAMPIRAN G. HASIL UJI STABILITAS KATALIS.....	95

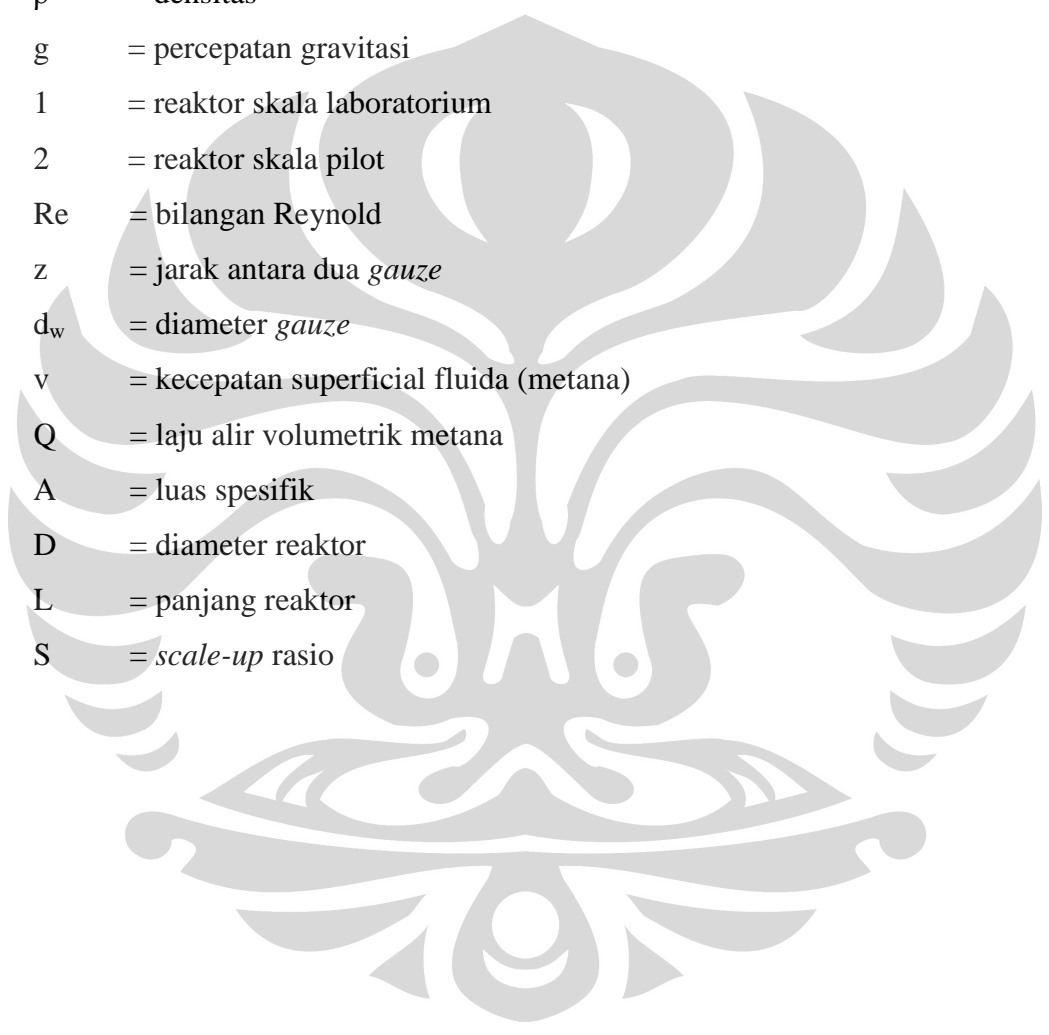
## DAFTAR SINGKATAN

CNT	= Carbon Nanotube
SWNT	= Single-walled Nanotube
MWNT	= Multi-walled Nanotube
SRM	= Steam Reforming of Methane
SMI	= Stronger Metal Interaction
MDR	= Methane Decompositon Reaction
CNF	= Carbon Nanofiber
CVD	= Chemical Vapour Deposition
GC	= Gas Chromatography





## DAFTAR NOTASI



$h$	= ketebalan lapisan
$\eta = \mu$	= viskositas
$\gamma$	= tegangan permukaan
$\rho$	= densitas
$g$	= percepatan gravitasi
1	= reaktor skala laboratorium
2	= reaktor skala pilot
Re	= bilangan Reynold
$z$	= jarak antara dua <i>gauze</i>
$d_w$	= diameter <i>gauze</i>
$v$	= kecepatan superficial fluida (metana)
$Q$	= laju alir volumetrik metana
$A$	= luas spesifik
$D$	= diameter reaktor
$L$	= panjang reaktor
$S$	= <i>scale-up</i> rasio

# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar belakang

Nanoteknologi dan pemanasan global telah menjadi isu global dalam beberapa dekade terakhir. Riset mengenai nanoteknologi telah berkembang lima kali lipat dari 1997 hingga 2002 (Researchandmarkets, 2003). Namun, studi mengenai teknologi nano di Indonesia dirasakan masih minim. Jika pun ada, sifatnya masih parsial dan belum terintegrasi dengan baik. Padahal, teknologi ini akan berkembang pesat secara global selambat-lambatnya mulai satu dasawarsa ke depan. Berdasarkan hasil survei, 85 persen responden perusahaan (khususnya bidang kosmetik dan farmasi) sudah mulai menerapkan riset nano. Akan tetapi, 89 persen bahan, terutama instrumennya, masih harus diimpor (Kompas, 2008).

Salah satu produk nanoteknologi adalah nanokarbon. Nanokarbon merupakan material padat yang terdiri atas ikatan rantai karbon yang berbentuk bulat maupun pipa dan berukuran kecil dalam skala nanometer. Dari semua bentuk nanokarbon yang dihasilkan, karbon *nanotube* adalah nanokarbon yang paling banyak dikaji dan dikembangkan karena struktur dan sifat fisiknya yang unik, serta mempunyai nilai tambah yang tinggi karena dapat digunakan sebagai penyimpan hidrogen, *nanoscale transistor*, superkapasitor, *nanoprobes*, sensor (Daenan, 2003), dan katalis (Zhang, 2006).

Pemanasan global disebabkan oleh besarnya konsumsi energi fosil yang mengemisikan karbon dioksida dalam jumlah besar. Dalam rangka meminimisasi emisi gas rumah kaca karbon dioksida adalah dengan menggunakan energi alternatif yang ramah lingkungan, salah satunya adalah hidrogen. Saat ini, hidrogen telah banyak dipakai sebagai bahan baku dalam industri-industri kimia, pengilangan minyak dan makanan. Untuk aplikasi ke depan akan diarahkan untuk sel bahan bakar (*fuel cells*) yang akan menggantikan pembangkit listrik dengan siklus termodinamika dan kendaraan bermotor dengan mesin pembakaran langsung serta untuk peralatan portabel sebagai pengganti baterai.

Hidrogen tidak tersedia di alam sehingga harus didapatkan dari proses konversi gas bumi, minyak bumi, batubara, atau air. Proses produksi hidrogen

yang paling murah dan paling banyak digunakan adalah reformasi metana/kukus yang dikenal dengan proses *steam reforming of methane* (SRM),  $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3 \text{H}_2$   $\Delta H_{298} = + 206 \text{ kJ/mol}$  (Wyzynski, 1994). Rute ini menghasilkan gas sintesis (campuran  $\text{CO} + \text{H}_2$ ), sehingga diperlukan reaksi lanjut untuk mengkonversi CO yaitu reaksi *water gas shift* ( $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$ ) dimana produk sampingnya adalah  $\text{CO}_2$ . Keberadaan CO dalam hidrogen tidak diinginkan terutama untuk sel bahan bakar bersuhu rendah karena walaupun dalam konsentrasi skala ppm akan meracuni katalisnya (Ermakova, 2002). Hidrogen murni dapat diperoleh dari proses elektrolisa air walaupun proses ini sangat mahal dikarenakan efisiensinya masih sangat rendah (Purwanto, 1997).

Dalam konteks pengembangan produksi hidrogen jangka pendek dan menengah melalui pendekatan dekarbonisasi fosil, salah satu alternatif yang menarik adalah dekomposisi katalitik langsung metana (gas bumi) menjadi hidrogen bebas dan karbon *nanotube* kualitas tinggi dengan reaksi sebagai berikut (Grujicic, 2002).



Dalam proses ini pemurnian CO tidak diperlukan lagi dan tidak menghasilkan  $\text{CO}_2$  (gas rumah kaca) dikarenakan unsur karbon dalam metana dikonversikan menjadi *advanced material* karbon *nanotube*. Proses ini berlangsung pada temperatur yang lebih rendah dengan kebutuhan energi yang lebih sedikit (lebih tidak endotermis) dibandingkan dengan proses *steam reforming of methane* (Ermakova, 2002; Li, 2000; Purwanto, 2005).

Reaksi ini bersifat endotermik sehingga membutuhkan temperatur yang tinggi (sampai  $1400^\circ\text{C}$ ) agar terjadi reaksi dekomposisi. Oleh karena itu, digunakan katalis untuk menurunkan energi aktivasi, sehingga konversi maksimum dapat dicapai pada suhu yang lebih rendah. Penggunaan logam transisi dapat menurunkan suhu reaksi dekomposisi metana secara signifikan.

Nikel merupakan katalis yang paling aktif untuk reaksi dekomposisi katalitik metana diantara logam-logam lainnya namun mudah terdeaktivasi dan *sintering* sehingga menyebabkan diameter partikel Ni membesar yang akan mempengaruhi kualitas karbon *nanotube*. Beberapa penelitian katalis berbasis nikel selanjutnya diarahkan untuk mengatasi deaktivasi dan terjadinya *sintering*

(Ermakova, 1999, 2000, 2002; Purwanto, 2005a,b). Dari hasil penelitian, dapat dilihat bahwa katalis multimetall Ni-Cu-Alumina merupakan katalis yang paling baik ditinjau dari kualitas produk karbon *nanotube*, yield produk hidrogen serta *life time*. Penyangga Alumina berfungsi untuk menaikkan luas permukaan inti aktif. Promotor Cu mempunyai peran pencegah *sintering* dikarenakan partikel Cu akan menyisip diantara partikel Ni dan promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) sehingga mencegah terjadinya *sintering* dan diameter partikel Ni tetap kecil.

Pengembangan reaktor merupakan hal penting untuk mencapai hasil reaksi yang diinginkan. Beberapa penelitian telah dilakukan dalam merancang reaktor untuk produksi skala besar diantaranya dengan menggunakan jenis reaktor *fixed bed*, *spouted bed* atau *fluidized bed*. Penggunaan reaktor jenis *fixed bed* (unggun diam) mengalami masalah penyumbatan akibat deposit karbon pada katalis yang menyebabkan kenaikan *pressure drop* (Purwanto, 2005). Penggunaan *spouted bed reaktor* membuat pencampuran katalis tidak homogen sehingga konversi metana yang dihasilkan sangat kecil, yaitu 7% (Muradov, 2001). Reaktor jenis *fluidized bed* memberikan konversi metana yang rendah pula, yaitu < 40% karena waktu tinggal reaktan yang singkat sehingga tidak mendapatkan hidrogen murni. Selain itu, laju alir umpan sulit dikontrol dikarenakan oleh perubahan ukuran partikel katalis selama reaksi serta terjadinya aglomerasi dan *sticking* dari partikel-partikel nanokarbon (Muradov, 2001; Wang, 2002; Weizhong, 2004; Morançais, 2007).

Dalam rangka mencari solusi permasalahan jenis reaktor diatas, Muharam dan Purwanto, 2007 telah memulai riset menggunakan reaktor katalitik terstruktur skala kecil untuk reaksi dekomposisi metana. Hasil penelitian menunjukkan bahwa pada reaktor katalis terstruktur, katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai 1400 menit (~24 jam) dengan penurunan laju alir yang relatif kecil (sekitar 10%) yang berarti dapat mengatasi permasalahan penyumbatan (*pressure drop*) pada reaktor ungun diam. Selain itu, ketinggian *gauze* dan laju alir umpan dapat diatur dengan mudah tanpa mempengaruhi hidrodinamika sehingga dapat menambah waktu tinggal reaktan yang pada akhirnya meningkatkan konversi. Disamping itu, kualitas *nanotube* yang dihasilkan cukup baik dengan diameter 30-50 nm dan ketebalan dinding 10-20 nm serta kemurnian hidrogen yang mencapai 99%.

Selain itu, telah dilakukan juga penelitian reaktor katalis terstruktur *gauze* skala laboratorium oleh Yulianti, 2008 dan telah terbukti dapat mencegah terjadinya *pressure drop* serta katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai lebih dari 33 jam dengan konversi metana tertinggi didapatkan pada suhu 700°C adalah 94.87%. Produk kemurnian hidrogen yang dihasilkan mencapai 95.14% dan diperoleh produk 200g C/g katalis.

Dengan hidrodinamika fluida yang tidak terlalu kompleks pada reaktor jenis ini, maka akan memudahkan dalam *scaling up* ke skala pilot. Desain reaktor katalis terstruktur *gauze* skala pilot dilakukan berdasarkan hasil dari skala *laboratorium* (Yulianti, 2008) untuk menghasilkan nanokarbon sebanyak 1 kg/hari. Keberhasilan reaktor katalis terstruktur skala pilot melalui rekasi dekomposisi katalitik metana akan membuka peluang untuk memproduksi gas hidrogen dan nanokarbon skala komersial dengan harga yang lebih murah dibandingkan dengan teknologi yang ada saat ini.

## 1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan hasil penelitian awal tentang reaktor katalis terstruktur *gauze*, maka akan dilakukan *scaling up* reaktor menjadi skala pilot dengan basis produksi 1 kg/hari nanokarbon. Oleh karena itu, yang menjadi rumusan masalah dalam penelitian ini adalah bagaimana menentukan ukuran dimensi reaktor katalis terstruktur *gauze* untuk memproduksi nanokarbon (1 kg/hari) dengan reaksi dekomposisi katalitik metana.

## 1.3 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk memperoleh prototipe reaktor katalis terstruktur *gauze* skala pilot untuk memproduksi nanokarbon (1 kg/hari) dan hidrogen secara simultan melalui reaksi dekomposisi katalitik metana.

#### 1.4 Batasan Masalah

Batasan pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. *Scale-up* reaktor dilakukan dengan perhitungan menggunakan prinsip *geometric similarity* untuk menghasilkan nanokarbon sebanyak 1 kg/hari.
2. Uji kinerja terhadap reaktor dilakukan dengan menggunakan katalis terstruktur *gauze* yang terbuat dari bahan SS 304.
3. Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah Nikel sebagai inti aktif dengan penambahan Cuprum sebagai *structural promoter* (*second metal*) dan Alumina sebagai *textural promoter*.
4. Preparasi katalis dilakukan dengan metode sol-gel. Pelapisan katalis pada kawat adalah dengan metode *dip-coating*.
5. Reaksi dilakukan pada temperatur 700 °C dan tekanan atmosferik (1 atm). Reaktan yang digunakan adalah gas metana.

#### 1.5 Sistematika Penulisan

##### BAB I Pendahuluan

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

##### BAB II Tinjauan Pustaka

Berisi tinjauan literatur mengenai reaksi dekomposisi metana, produk reaksi dekomposisi metana, katalis pada reaksi dekomposisi metana, reaktor untuk reaksi dekomposisi metana, katalis terstruktur, *scale-up* reaktor, teknik preparasi dan pelapisan katalis.

##### BAB III Metodologi Penelitian

Berisi penjelasan mengenai prosedur penelitian secara umum, termasuk di dalamnya perhitungan dimensi reaktor dan konfigurasi internalnya, preparasi dan pelapisan katalis, fabrikasi reaktor, karakterisasi katalis, *set-up* rangkaian

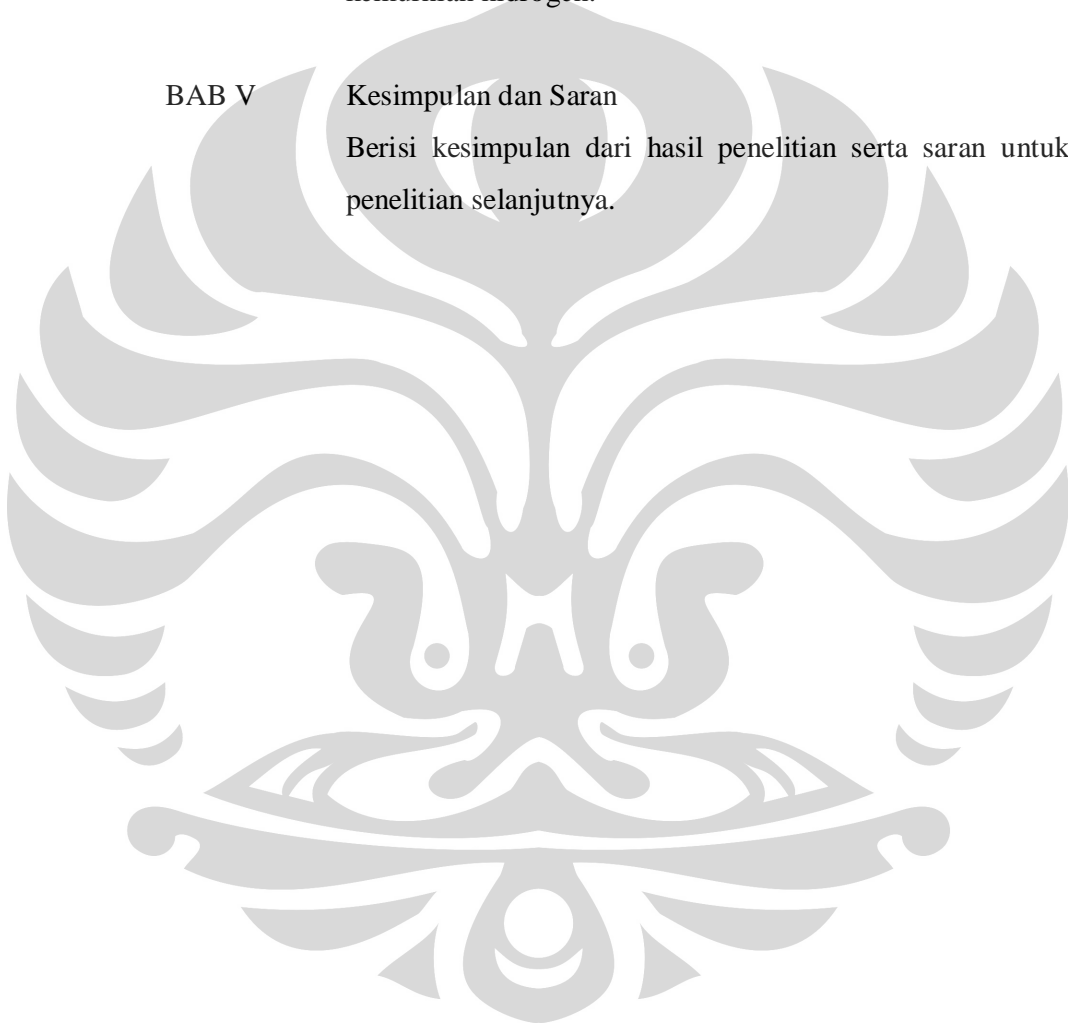
peralatan, uji kinerja reaktor, dan karakterisasi produk nanokarbon.

**BAB IV Hasil dan Pembahasan**

Berisi penjelasan mengenai hasil uji kinerja katalis terstruktur *gauze* seperti konversi metana, yield karbon, dan kemurnian hidrogen.

**BAB V Kesimpulan dan Saran**

Berisi kesimpulan dari hasil penelitian serta saran untuk penelitian selanjutnya.



## BAB II TINJAUAN PUSTAKA

### 2.1 Dekomposisi Katalitik Metana

Dekomposisi didefinisikan sebagai salah satu dari reaksi kimia yang menguraikan atau memutuskan ikatan rantai suatu senyawa menjadi unsur-unsur atau senyawa yang lebih sederhana. Definisi ini memiliki arti yang sama dengan perengkahan (*cracking*). Salah satu contohnya adalah dekomposisi metana (hidrokarbon yang paling stabil) yang dapat diartikan sebagai pemutusan ikatan H-C dari metana menjadi komponen yang lebih sederhana, yaitu hidrogen dan karbon. Pemilihan metana sebagai reaktan untuk produksi nanokarbon dan hidrogen disebabkan karena metana merupakan hidrokarbon dengan perbandingan hidrogen/karbon yang paling tinggi. Selain itu, metana bisa didapat langsung dari alam tanpa harus diolah terlebih dahulu, sehingga mengurangi biaya produksi. Adapun reaksi dekomposisi metana atau *Methane Decomposition Reaction* (MDR) adalah sebagai berikut:



Reaksi perengkahan metana (*methane cracking*) dapat dibedakan menjadi dua, yaitu perengkahan metana secara langsung (*direct methane cracking*) dan perengkahan metana secara tidak langsung (*indirect methane cracking*). Reaksi dekomposisi metana tergolong dalam reaksi perengkahan metana secara langsung.

Selain itu, perkembangan penelitian dekomposisi metana secara umum dapat digolongkan menjadi:

- dekomposisi metana secara termal (*thermal cracking*) yang menghasilkan hidrogen dan karbon hitam, dan
- dekomposisi katalitik metana dengan menggunakan katalis berdasar logam transisi (Fe, Co, dan Ni) yang menghasilkan hidrogen dan karbon berukuran nanometer yang biasa disebut sebagai nanokarbon.



## 2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana

### 2.2.1 Hidrogen

Hidrogen adalah bahan baku bebas polutan (*clean fuel*), karena pembakaran hidrogen tidak menimbulkan polutan seperti CO dan CO<sub>2</sub> yang timbul akibat pembakaran bahan bakar dari minyak bumi. Pembakaran hidrogen dapat diformulasikan sebagai berikut:



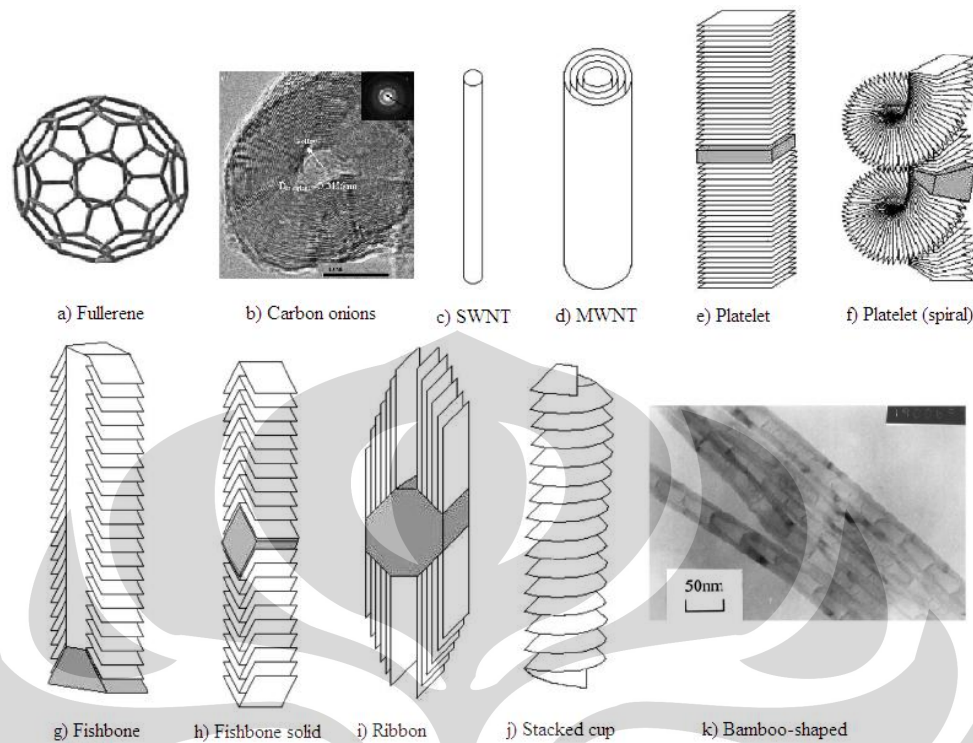
Reaksi di atas hanya menghasilkan air sebagai produknya. Selain itu energi yang dihasilkan oleh pembakaran hidrogen cukup tinggi, yaitu sebesar 286 kJ/mol atau 33.886 cal/g. Nilai ini lebih besar daripada energi pembakaran yang dihasilkan oleh bensin, yaitu berkisar 11.100-11.470 cal/g.

Selain diharapkan dapat menjadi bahan bakar alternatif, hidrogen telah banyak digunakan dalam sektor industri, seperti industri petroleum dan kimia, misalnya dalam produksi amonia yang menggunakan hidrogen sebagai bahan baku utama. Dalam bidang energi, hidrogen digunakan sebagai bahan bakar *fuel cell*.

### 2.2.2 Nanokarbon

Nanokarbon didefinisikan sebagai material karbon yang bukan hanya ukuran partikelnya saja yang berukuran nanometer akan tetapi struktur dan teksturnya pun berukuran nanometer (Michio, 2004). Karbon nanotube ditemukan oleh Ijima dengan *transmission electron microscopy* (TEM) pada tahun 1991 (Ijima, 2002). Sejak itu banyak penelitian tentang nanokarbon dilakukan, seperti terhadap struktur, sifat, dan metode preparasinya. Karbon nanotube telah menarik perhatian para peneliti sebagai komponen yang penting untuk mewujudkan nanoteknologi di masa yang akan datang.

Dua bentuk susunan unsur karbon yang paling dikenal adalah intan dan grafit. Pada intan, masing-masing atomnya tersusun secara rapat dan secara simetris terkoordinasi memenuhi ruang tiga dimensi, sedangkan grafit tersusun dari karbon heksagonal yang membentuk lembar atom dua dimensi, dimana diantara keduanya tersebut terdapat jarak yang cukup jauh.



Gambar 2.1. Beragam struktur nanokarbon (Rao, 2001, He, 2006, Gullon, 2006)

Selain kedua bentuk tersebut, ada beberapa bentuk susunan unsur karbon lainnya seperti terlihat pada Gambar 2.1 di atas, yaitu:

1. *Fullerene* atau *buckminsterfullerene* atau *bucky ball*, yaitu lembaran grafit yang membentuk bola (Gambar (a)). *Fullerene* terdiri dari karbon-karbon  $sp^2$  dan  $sp^3$ . Contohnya adalah C<sub>60</sub>, yaitu *fullerene* yang terdiri dari 12 cincin pentana dan 20 cincin heksana (Rao, 2001).
2. *Carbon onions* terdiri dari lapisan grafit yang konsentrik seperti bola (*quasi-spherical*) dan seperti pada (Gambar (b)) (He, 2006).
3. Karbon nanofilamen adalah nanokarbon berbenfuk filamen. Secara umum, karbon nanofilamen terdiri dari karbon nanofiber (CNF) dan karbon nanotube (CNT). Bentuk-bentuk nanofilamen secara umum adalah:
  - a. Karbon nanotube (CNT) berbentuk pipa, merupakan lapisan grafit yang berbentuk silinder (pipa). CNT dapat berupa *single-walled carbon nanotube* (SWNT) yang hanya terdiri dari satu lapis lembaran grafit seperti pada Gambar (c), maupun *multi-walled*

*carbon nanotubes* (MWNT) yang terdiri dari berlapis-lapis lembaran grafit yang konsentrik seperti pada Gambar (d).

- b. *Platelet carbon nanofiber*, berupa lapisan grafit kecil yang tegak lurus dengan arah aksial fiber seperti pada Gambar (e). Nanofiber ini harus memiliki hidrogen atau atom lainnya dalam jumlah tak terbatas untuk stabilisasi piringan (*plate*). *Platelet carbon nanofiber* dapat pula berbentuk spiral (Gambar (f)). Biasanya, partikel padatan berada pada bagian tengah fiber (Gullon, 2006).
- c. *Fishbone carbon nanofibers*, dimana lapisan grafit memiliki kemiringan dari sumbu aksialnya. Seperti platelet, bentuk ini juga membutuhkan hidrogen untuk menstabilkan bagian ujungnya. *Fishbone carbon nanofibers* dapat berinti kosong (*hollow core*) maupun berinti padatan (*solid core*) seperti pada Gambar (g) dan (h) (Gullon, 2006).
- d. *Ribbon carbon nanofibers* berupa lapisan grafit yang lurus dan tidak tergulung dan posisinya sejajar dengan sumbu aksial fiber (Gambar (i)) (Gullon, 2006).
- e. *Stacked cup carbon nanofibers* berupa lapisan spiral grafit yang kontinu sepanjang sumbu aksial fiber (Gambar (j)) (Gullon, 2006).
- f. *Bamboo-shaped carbon filament*, berbentuk seperti bambu, dimana banyak terdapat ruang kosong dan *joint-joint* seperti yang terlihat pada Gambar (k).

### 2.3 Karbon Nanotube

Karbon nanotube ditemukan pertama kali oleh Sumio Iijima pada tahun 1991. Karbon nanotube merupakan lembaran grafit yang membentuk *tube*/silinder. Lembaran grafit ini tersusun dari ikatan heksagonal atom-atom karbon  $sp^3$ .

### 2.3.1 Jenis karbon nanotube

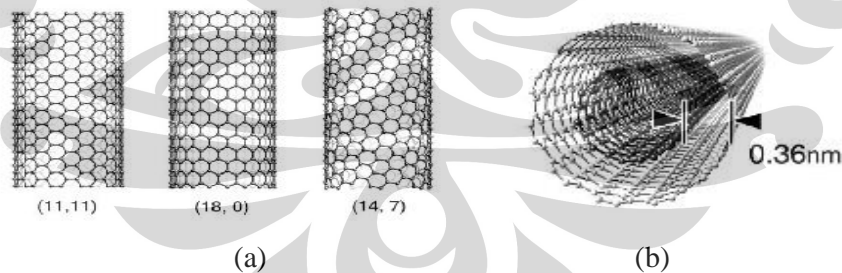
Karbon nanotube secara umum dapat dibagi menjadi 2 jenis yaitu :

1. *Single-Walled Carbon Nanotube* (SWNT)

Jenis karbon nanotube berdiameter antara 0.4 nm dan 2.5 nm dengan panjang beberapa mikrometer sampai beberapa milimeter (Gambar 2.2.a). Karbon nanotube jenis SWNT memiliki 3 jenis bentuk struktur yang berbeda antara lain: *armchair type*, *zig-zag type*, dan *helical type*. Karbon nanotube jenis SWNT memiliki sifat-sifat yang lebih unggul daripada bentuk MWNT, namun untuk memperoleh karbon jenis ini tidaklah mudah. Oleh karena diameternya yang sangat kecil, karbon jenis ini banyak diaplikasikan sebagai *hydrogen storage* untuk *fuel cell*.

2. *Multi-Walled Carbon Nanotube* (MWNT)

Karbon nanotube jenis ini merupakan SWNT yang tersusun secara aksial konsentris dengan jarak antara SWNT yang satu dengan yang lainnya sebesar 0.34 nm (gambar 2.2.b) . Jumlah lapisan yang terdapat MWNT bervariasi dari dua sampai beberapa puluh lapisan, sehingga memungkinkan diameter eksternalnya mencapai 100 nm. Meskipun harganya tidak semahal harga SWNT, yaitu sebesar \$55-150/g MWNT tergantung diameternya, karbon nanotube jenis ini memiliki banyak aplikasi yang tidak kalah dengan SWNT.



Gambar 2.2. Jenis karbon nanotube (a). *Single Walled Carbon Nanotube*,  
(b). *Multi-Walled carbon Nanotube* (Ijima, 2002)

### 2.3.2 Sifat fisik karbon nanotube

Karbon nanotube memiliki banyak sifat fisik yang unggul sehingga produk karbon nanotube banyak dimanfaatkan dalam dunia industri untuk digunakan

dalam berbagai aplikasi. Sifat-sifat yang dimiliki oleh karbon nanotube dan pemanfaatannya dalam bidang industri, antara lain:

- Memiliki kekuatan mekanis yang besar.  
Karbon nanotube jenis SWNT memiliki kekuatan tensil sebesar 50-100 GPa dan bilangan modulus Young sebesar 1-2 TPa. Sedangkan karbon nanotube jenis MWNT, memiliki kekuatan tensile dan modulus Young masing-masing sebesar 11-63 GPa dan 270-950 TPa.
- Memiliki konduktivitas elektronik yang besar.  
Penambahan karbon nanotube dalam konsentrasi rendah ke bahan plastik dapat memberikan efek konduktivitas elektrik. Hal ini memungkinkan pengerjaan *electrostatic painting* dalam proses pelapisan *sparepart* otomotif.
- Memiliki rasio panjang terhadap diameter yang tinggi sehingga memungkinkan aplikasi karbon nanotube sebagai bahan komposit.
- Karbon nanotube dapat digunakan sebagai pelapis anti-statis untuk mencegah bahaya sensitivitas komponen elektronik ketika sedang dalam penyimpanan dan proses perkapalan.

### 2.3.3 Sintesis Karbon Nanotube

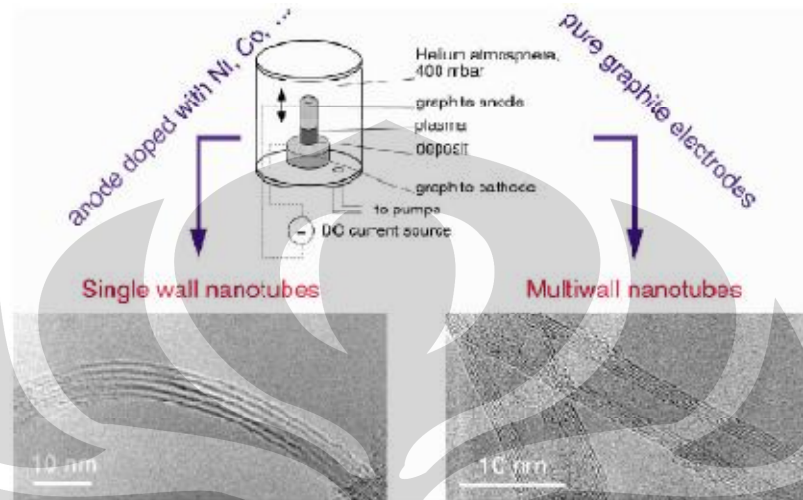
Untuk memperoleh karbon nanotube baik SWNT maupun MWNT dapat dilakukan dengan beberapa cara, yaitu:

#### a. *Arch-Discharge*

Metode ini merupakan metode yang paling sederhana jika dibandingkan dengan metode yang lain. Prosesnya cukup singkat, yaitu mengalirkan arus listrik searah melewati elektrode grafit di dalam vesel yang berisi gas argon atau gas *inert* lainnya (Gambar 2.3). Pada proses ini karbon nanotube tumbuh pada bagian elektroda negatif (anoda). Meskipun kelihatannya sederhana, metode *arch-discharge* tidak bernilai ekonomis, karena grafit yang digunakan merupakan material yang bernilai tinggi, di samping itu diperlukan pemurnian produk dari grafit.

Metode ini pertama kali dilakukan oleh Iijima pada tahun 1991. Dari hasil penelitiannya didapatkan karbon nanotube jenis MWNT untuk pertama

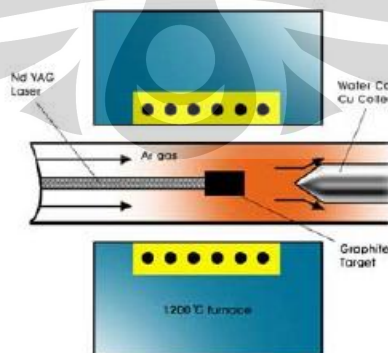
kalinya, dengan ukuran diameter 4-30 nm dan panjang lebih dari satu mikrometer. MWNT yang didapatkan oleh Iijima ini terdiri dari 2-50 silinder yang tersusun secara aksial konsentris.



Gambar 2.3. Skema *arch-discharge*. Dua elektrode grafit digunakan untuk memproduksi arus listrik searah *arch-discharge* dalam atmosfer gas *inert* (Daenan, 2003)

#### b. *Laser Ablation*

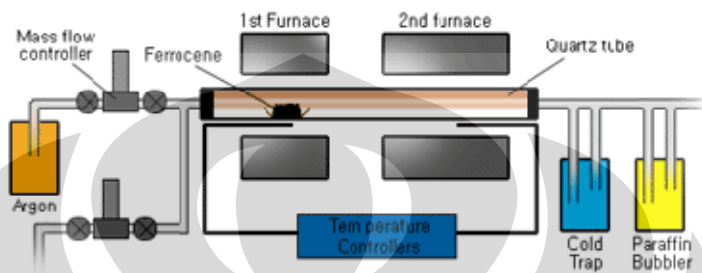
Metode ini diperkenalkan oleh Smalley dan rekan-rekannya pada tahun 1996 dan dihasilkan karbon *nanotube* jenis SWNT berdiameter 5-20 nm dalam bentuk *bundle*, dengan menggunakan metode *laser ablation* (penguapan) batang grafit dengan Ni dan Co pada suhu 1200°C (Gambar 2.4).



Gambar 2.4. Skema *Laser Ablation* (Daenan, 2003)

c. *Chemical Vapor Deposition (CVD)*

Proses CVD merupakan reaksi dekomposisi katalitik hidrokarbon (biasanya asetilen atau etilen) di dalam reaktor berbentuk *tube* pada temperatur 550-750°C, yang diikuti pertumbuhan karbon *nanotube* di permukaan katalis pada sistem pendinginan (Gambar 2.5).



Gambar 2.5. Skema proses CVD (Daenan, 2003)

d. Dekomposisi Katalitik Metana

Sintesis karbon *nanotube* dengan metode dekomposisi katalitik metana akan dijelaskan lebih detail pada sub-bab setelah ini. 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 terlampau tinggi dan proses pemurnian produknya cukup sederhana karena hanya memisahkan karbon nanotube yang terbentuk dari logam katalis tempat nanotube tersebut menempel. Sedangkan pada metode *laser ablation* dan *arch-discharge* 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.

### 2.3.4 Aplikasi Karbon Nanotube

CNT banyak diaplikasikan karena sifat-sifatnya yang unik, antara lain:

a. Penyimpan energi

Bahan-bahan yang mengandung karbon biasanya digunakan sebagai elektroda pada *fuel cell*, baterai, dan aplikasi elektrokimia yang lainnya. Pada *fuel cell*, efisiensinya ditentukan oleh laju perpindahan elektron pada

elektroda karbon. Efisiensi yang tinggi ditemukan dengan menggunakan CNT, dimana CNT memiliki ukuran yang kecil dan topologi permukaan yang halus (Daenan, 2003). Sebagai penyimpan energi, CNT diaplikasikan sebagai penyimpan hidrogen dan superkapasitor.

- Penyimpan hidrogen

CNT diprediksi dapat menyimpan cairan atau gas pada bagian dalamnya melalui efek kapiler, karena bentuknya yang berupa silinder kosong dan ukuran diameter yang berskala nanometer. Oleh karena itu, CNT dapat digunakan sebagai penyimpan hidrogen. Hidrogen dapat diabsorb dengan dua cara, yaitu dengan *chemisorptions*, dimana molekul  $H_2$  berdisosiasi dan hidrogen disimpan dalam bentuk atom, dan dengan *physisorption*, dimana hidrogen disimpan dalam bentuk molekul. CNT yang berkualitas baik sebagai penyimpan hidrogen adalah karbon *nanotube* yang *single-wall* (diameternya kecil), panjang, dan seragam (Grujicic, 2002).

- Superkapasitor

Superkapasitor berpotensi untuk digunakan pada peralatan elektronik karena kapasitansinya yang tinggi. Kapasitor adalah komponen listrik yang digunakan untuk menyimpan muatan listrik, dan secara sederhana terdiri dari dua elektroda yang dipisahkan oleh suatu penyekat (dielektrik). Dalam pemakaiannya, salah satu elektroda diberi muatan positif dan elektroda lainnya diberi muatan negatif yang besarnya sama. Antara kedua elektroda ini muncul medan listrik yang berarah dari positif ke elektroda yang bermuatan negatif. Kemampuan kapasitor dalam menyimpan muatan listrik atau kapasitansi bergantung pada geometri kapasitor, yaitu jarak pisah antar elektroda, luas elektroda, dan permitivitas bahan penyekat.

Pada elektroda nanotube, kapasitansi yang sangat besar timbul karena jarak pisah antar elektroda berskala nanometer dan luas permukaan nanotube yang besar. Oleh karena itu, muatan dalam



jumlah besar dapat diberikan pada elektroda, dengan hanya membutuhkan voltase (beda potensial) listrik yang kecil. Oleh karena itu, CNT dapat digunakan sebagai superkapasitor.

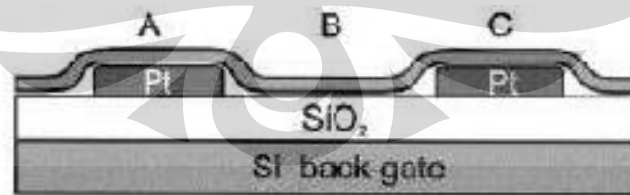
b. Peralatan elektronik

- *Field emitting devices*

Pada medan listrik tinggi, elektron dapat terekstraksi dari suatu padatan. Arus emisi ini tergantung pada kekuatan medan listrik pada permukaan teremisi dan pada jumlah energi yang dibutuhkan untuk mengeksitasi elektron ke keadaan vakum. Diperlukan medan listrik yang tinggi agar dapat mengeksitasi suatu elektron. *Emitter* yang ideal adalah yang mempunyai diameter berukuran nanometer, berstruktur utuh, konduktivitas listrik tinggi, dan stabilitas kimia yang baik. Karbon nanotube memiliki semua karakteristik ini. Penggunaan karbon nanotube dalam *field emitting device* adalah untuk *flat panel display*, tabung gas *discharge* pada jaringan telekomunikasi, *electron guns* untuk mikroskop elektron.

- Transistor

Transistor dapat dibuat dari satu buah SWNT. Hanya dengan menghubungkan dengan elektroda-elektroda yang beda potensialnya tinggi, CNT dapat berubah fungsinya dari sebagai konduktor menjadi insulator. Skema transistor dari CNT dapat dilihat pada Gambar 2.6.



Gambar 2.6. Skema transistor CNT (Daenan, 2003 )

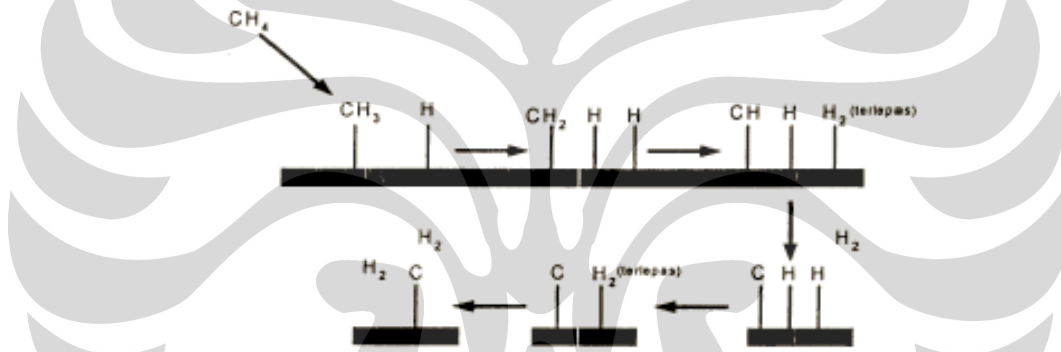
c. *Nanoprobes* dan sensor

CNT dapat pula digunakan sebagai *scanning probe instruments* karena karakteristiknya yang fleksibel. Penggunaan CNT akan meningkatkan

resolusi instrumen dibandingkan dengan penggunaan Si atau ujung logam. Namun, vibrasi CNT cukup mengganggu resolusi instrumen. Vibrasi ini akan semakin besar, apabila CNT semakin panjang. Oleh karena itu, untuk mengatasinya dibutuhkan CNT yang pendek.

#### 2.4 Mekanisme Pertumbuhan Karbon Nanotube

Pada reaksi dekomposisi metana, sebuah molekul metana direngkah (*cracking*) menjadi sebuah molekul karbon dan dua buah molekul hidrogen. Gambar 2.7 menunjukkan mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana. Atom hidrogen terputus satu persatu membentuk ion karbonium. Dan pada akhirnya didapatkan sebuah molekul atom karbon dan dua molekul hidrogen pada akhir reaksi.



Gambar 2.7 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana

Salah satu teori mekanisme pertumbuhan nanokarbon, menyebutkan bahwa mekanisme pertumbuhan nanokarbon dipengaruhi oleh laju pembentukan lapisan karbon terhadap laju pergerakan metal. Dalam teori itu, Safronov dan Kovalski menyatakan bahwa mekanisme pertumbuhan karbon 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 (Chen, 2001).

Teori mekanisme pertumbuhan oleh Chen 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.

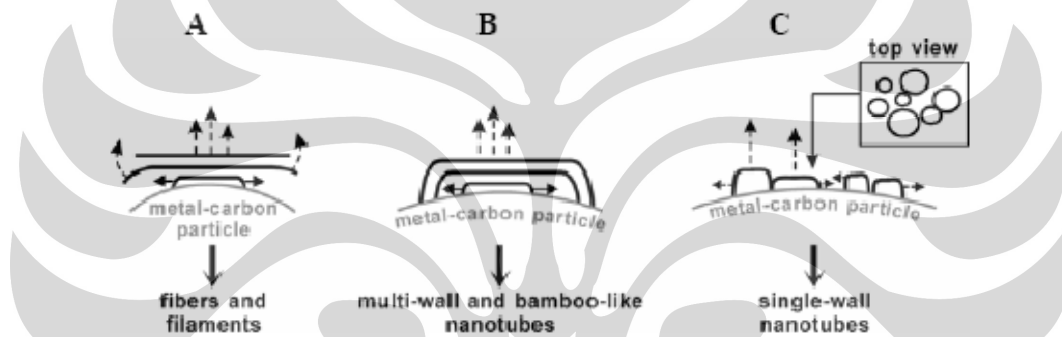
Berdasarkan kedua teori di atas, agar terbentuk karbon nanotube diperlukan laju pembentukan lapisan karbon dan laju pergerakan logam sama. Agar laju, pergerakan logam sama dengan laju pembentukan lapisan karbon, diperlukan keadaan partikel logam yang meleleh (*liquid*).

Penelitian lain menyatakan bahwa faktor yang menentukan jenis karbon yang dihasilkan suatu proses dekomposisi metana adalah proses nukleasi karbon pada logam (Kuznetov, 2001). Proses nukleasi ini merupakan proses presipitasi beberapa karbon pada permukaan partikel logam yang jenuh karbon (*carbon-saturated metal particles*). Partikel logam yang jenuh karbon ini dicapai pada saat logam berada dalam fasa *liquid* yaitu pada temperatur sedikit di bawah temperatur eutektik. Karbon-karbon tersebut selanjutnya bergabung membentuk ikatan heksagonal yang kemudian bertransformasi menjadi lembaran grafit.

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. Karena permukaan logam kurang jenuh karbon, nukleus berikutnya tumbuh di bawah nukleus yang pertama tanpa berikatan dengan partikel logam di permukaan. Hal ini berlangsung terus-menerus sehingga didapatkan tumpukan lembaran grafit menuju sudut tertentu atau sejajar arah aksial dan fiber (Gambar 2.8(a)). Bentuk nanokarbon yang dihasilkan ini dinamakan nanofilamen.

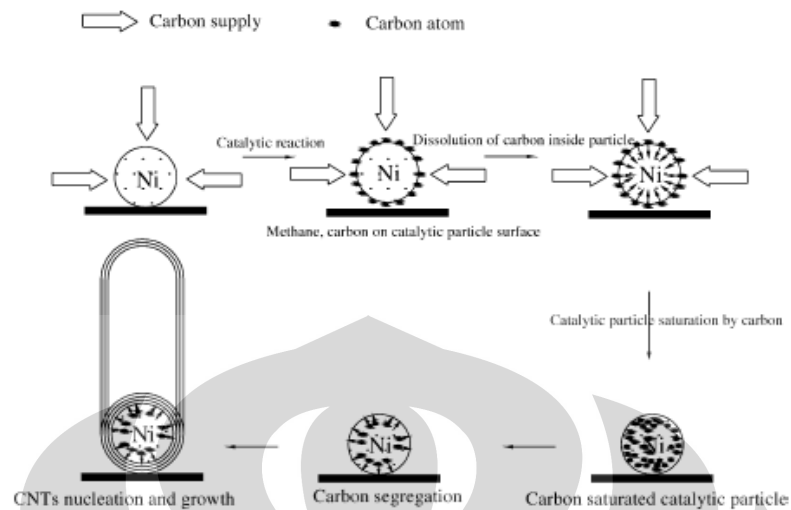
Proses pembentukan *Multi-Walled Nanotube* (MWNT) hampir sama dengan pembentukan nanofilamen. Hanya saja MWNT terbentuk pada permukaan partikel logam yang lebih jenuh karbon. Selain itu, ujung dari nukelus berikutnya akan selalu berikatan dengan permukaan partikel logam. Pada mekanisme pertumbuhan MWNT, sebelum terbentuk nukelus yang baru, terjadi difusi atom karbon membentuk nanotube, begitu seterusnya sehingga didapatkan dinding nanotube yang berlapis-lapis (Gambar 2.8 (b)).

Berbeda dengan proses pertumbuhan nanofilamen dan MWNT, pada pertumbuhan SWNT, beberapa nukelus mengendap pada permukaan partikel logam yang sama. Hal ini dapat terjadi jika karbon permukaan partikel logam sangat jenuh karbon (Gambar 2.8 (c)).



Gambar 2. 8 Mekanisme pembentukan nukleus pada pertumbuhan (a) karbon nanofilamen; (b) MWNT; dan (c) SWNT

Gambar 2.9 menunjukkan mekanisme pertumbuhan karbon nanotube. Setelah terjadi reaksi katalitik, terjadi penjenuhan karbon pada partikel nikel yang digunakan sebagai katalis. Pada suatu saat, partikel nikel akan jenuh dengan karbon dan pemisahan karbon terjadi. Dengan pemisahan karbon yang terjadi secara berkesinambungan, terjadi pertumbuhan karbon nanotubes.



Gambar 2. 9 Skema pertumbuhan CNT

## 2.5 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Reaksi dekomposisi katalitik metana merupakan reaksi yang sangat endotermis, sehingga diperlukan temperatur yang sangat tinggi agar tercapai konversi maksimum. Temperatur yang sangat tinggi ini tidak disukai dalam aplikasi industri karena mengakibatkan tambahan biaya untuk kebutuhan energi dan biaya perawatan. Penambahan katalis dalam reaksi dekomposisi metana memungkinkan tercapainya konversi yang maksimum pada temperatur yang lebih rendah. Selain meningkatkan kuantitas yield yang dihasilkan, katalis juga berperan dalam hal kualitas nanokarbon.

### 2.5.1 Katalis Ni-Cu-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Inti aktif suatu katalis merupakan unsur utama penentu aktivitas katalis dalam reaksi. Pada reaksi dekomposisi metana yang paling banyak dipakai adalah logam Ni, Co, dan Fe. Diantara ketiga logam tersebut, Ni memiliki beberapa kelebihan, yaitu: aktivitas, kapasitas ukuran pori dan yield karbon yang relatif tinggi, toksisitas yang relatif rendah, dan harga yang relatif murah. Selain itu, Ni juga memiliki titik leleh terendah dibanding logam Co dan Fe sehingga pembentukan karbon nanotube dapat dilakukan pada temperatur yang lebih rendah.

Selain inti aktif, katalis juga terdiri dari penyangga (*support*) agar kualitas nanokarbon lebih baik karena partikel sangat terdispersi. Biasanya penyangga

alumina menghasilkan produk CNT sementara silika cenderung menghasilkan CNF.

Salah satu permasalahan dalam dekomposisi katalitik metana adalah umur katalis yang pendek (cepat terdeaktivasi). Salah satu alternatif adalah dengan penambahan promotor. Penambahan promotor dalam jumlah yang relatif sedikit dapat meningkatkan aktivitas, selektivitas, ataupun stabilitas. Promotor dapat diklasifikasikan menjadi dua, yaitu *structural promotor* dan *textural promotor*.

- *Structural promotor*

*Structural promotor* mempengaruhi sifat kimia dari katalis. Hal ini terjadi karena *structural promotor* mengubah komposisi kimia dari katalis tersebut. Pada reaksi dekomposisi katalitik metana, *structural promotor* yang digunakan adalah logam transisi seperti Cu dan Mo. Logam Cu lebih banyak digunakan dalam penelitian reaksi dekomposisi katalitik metana karena memiliki afinitas yang tinggi terhadap struktur grafit sehingga dapat menghambat terbentuknya lapisan grafit pada permukaan inti aktif dan deaktivasi katalis yang disebabkan akumulasi karbon yang terlalu cepat dapat dihindari.

- *Textural promotor*

*Textural promotor* lebih bersifat sebagai penstabil (*stabilizer*) yang merupakan bahan *inert* yang mencegah terjadinya *sintering* pada partikel katalis yang berbentuk mikrokristal. Agar efektif, ukuran *textural promotor* harus lebih kecil daripada inti aktif. Selain itu, promotor ini juga harus terdispersi dengan baik dan tidak bereaksi atau membentuk larutan padat dengan inti aktif katalis, serta memiliki titik lebur yang tinggi karena jumlahnya yang sedikit. Keseluruhan sifat yang harus dimiliki oleh material *textural promotor* tersebut terdapat pada senyawa oksida logam *Hard-to-Reduced Oxide* (HRO), seperti  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{CrO}_2$ ,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{MgO}_2$ , dan  $\text{TiO}_2$ .

Informasi mengenai logam Ni yang baik sebagai inti aktif dan logam Cu yang baik sebagai *structural promotor*, memicu pengembangan katalis berbasis

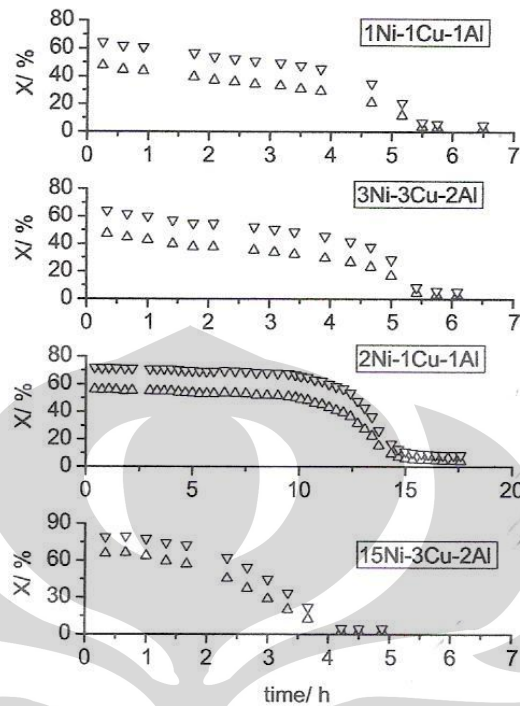
Ni-Cu. Berdasarkan hasil penelitian (Muharam, 2007), disimpulkan bahwa penggunaan katalis Ni-Cu-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menghasilkan produk nanokarbon dengan kualitas paling baik dibanding katalis Ni-Cu-SiO<sub>2</sub> dan Ni-Cu-MgO.

### 2.5.2. Pengaruh Komposisi Katalis

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. Pada percobaan 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 dari beberapa hasil penelitian.

Tabel 2.1. Komposisi katalis dan hasilnya

Sampel	Komposisi/ rasio atomik (Ni:Cu:Al)	gC/g katalis	Suhu operasi (K)	Produk nanokarbon	Referensi
15Ni-3Cu- 2Al	15:3:2	39	773 873 973 1013	<i>Octopus-shaped</i> dan <i>fibrous nanocarbon</i> <i>Octopus-shaped</i> dan <i>fibrous nanocarbon</i> <i>Octopus-shaped</i> dan <i>hollow fiber</i> <i>Hollow fiber</i>	Chen, 2004
2Ni-1Cu-1Al	2:1:1	152	773 1013	<i>Octopus-shaped</i> dan <i>fibrous nanocarbon</i> <i>Hollow fiber</i>	Chen, 2004
3Ni-3Cu-2Al	3:3:2	42	1013	<i>Hollow fiber</i>	Chen, 2004
1Ni-1Cu-1Al	1:1:1	41	1013	<i>Nanofiber</i> dan <i>nanoballs</i>	Chen, 2004
2Ni-1Cu-1Al	2:1:1	1,04	700	Nanotube dengan diameter 7,51 nm	Saputra, 2005



Gambar 2.10. 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, 3Ni-3Cu-2Al, dan 1Ni-1Cu-1Al; (▽) konversi metana, (△) konsentrasi hidrogen (Chen,2004).

## 2.6 Deaktivasi Katalis

Permasalahan utama dalam proses dekomposisi hidrokarbon, termasuk metana, adalah terjadinya deaktivasi katalis. Secara umum terdapat tiga kategori penyebab terjadinya deaktivasi katalis, yaitu:

### a. Deaktivasi karena *sintering* (*Aging*)

Deaktivasi katalis yang terjadi karena katalis kehilangan luas permukaan aktif. Berkurangnya luas permukaan ini bisa dikarenakan temperatur yang terlalu tinggi, aglomerasi katalis, dan tertutupnya permukaan katalis. *Sintering* dapat dihindari dengan mengoperasikan temperatur di bawah 40% *melting point* padatan katalis.

### b. Deaktivasi karena *coking* atau *fouling*

Terjadi karena terdapatnya *coke* atau material yang menutupi permukaan pori-pori katalis. *Coking* dapat diatasi dengan menaikkan tekanan. *Coking* akan mempengaruhi kecepatan deaktivasi yang disebabkan adanya proses



difusi karbon ke dalam pori-pori katalis Ni dengan ditandai terbentuknya deposit karbon.

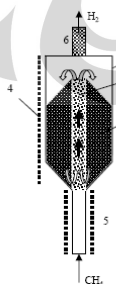
c. Deaktivasi karena *poisoning*

Terjadi karena terdapatnya senyawa yang bersifat racun katalis. Senyawa ini ditemukan karena terbawa pada saat *fresh feed* atau terbentuk pada saat reaksi, misalnya kandungan sulfur dalam metana.

## 2.7 Reaktor untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Selain aspek katalis yang digunakan, salah satu faktor untuk mencapai hasil yang optimum dari reaksi dekomposisi katalitik metana adalah perancangan reaktor. Beberapa penelitian tentang perancangan reaktor untuk reaksi dekomposisi katalitik metana telah dilakukan, diantaranya oleh Nazim Muradov dan Qian Weizhong.

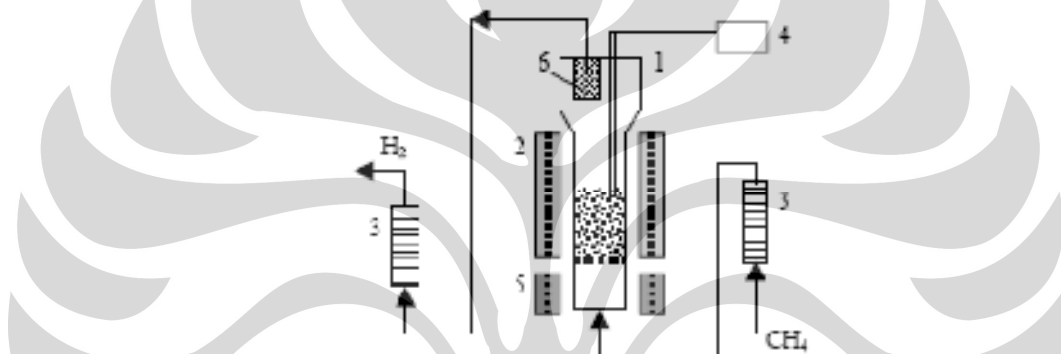
Muradov menggunakan dua jenis reaktor, yaitu *spouted bed* reaktor dan *fluidized bed* reaktor. Pada *spouted bed reaktor* (SBR), metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tinggi sehingga menimbulkan *spouting zone* di tengah reaktor. Sebagian katalis terbawa aliran metana di sepanjang *spouting zone* dan akan tersembur keluar di bagian atas *spouting zone*. Agar fluidisasi katalis menjadi homogen, maka proses dilakukan dengan kecepatan superficial gas 2 cm/s dan rasio tinggi reaktor terhadap diameternya 5 sampai 6. Namun, dengan kondisi tersebut konversi metana yang dihasilkan sangat kecil, yaitu 7%. Hal ini dapat terjadi karena waktu kontak yang sangat singkat antara metana dengan katalis. *Spouted bed reaktor* yang digunakan Muradov dapat dilihat pada gambar berikut:



Gambar 2.11. *Spouted bed reaktor*: (1) dinding luar reaktor, (2) *Spouting Zone*, (3) Katalis, (4) Pemanas elektrik, (5) *pre-heater*, dan (6) filter

Selain menggunakan SBR, Muradov juga menggunakan *fluidized bed* reaktor (FBR). FBR telah digunakan secara luas dalam industri kimia, metalurgi, dan perminyakan. Prinsip kerjanya adalah metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tertentu sehingga menyebabkan katalis terfluidisasi.

Selama fluidisasi akan terjadi kontak antara katalis dengan metana selama waktu tertentu yang lamanya dapat dikontrol dengan menggunakan rasio antara kecepatan umpan dengan massa katalis. Dari hasil penelitian ini, setelah 1.5-2 jam laju dekomposisi metana mulai menurun karena terjadi pengurangan luas inti katalis akibat deposit karbon. Sistem reaktor yang digunakan oleh Muradov adalah sebagai berikut:



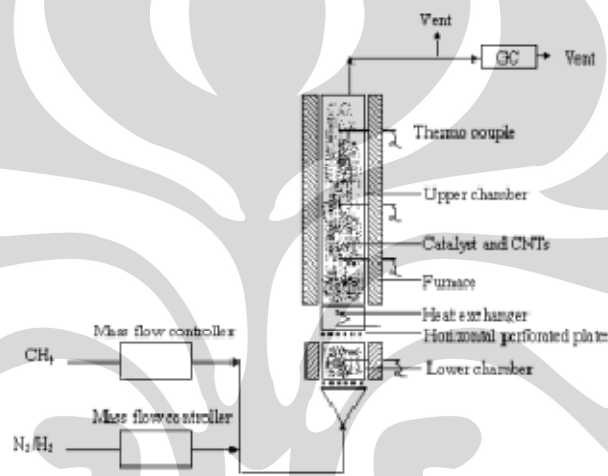
Gambar 2.12. Sistem reaktor: (1) *fluidized bed* reaktor, (2) *electric heater*, (3) *flow-meter*, (4) *temperature controller*, (5) *pre-heater*, (6) *filter*

Pada reaksi dekomposisi katalitik metana, untuk memutuskan ikatan kuat C-H dari metana yang merupakan reaksi endotermis, diperlukan temperatur tinggi dan katalis dengan aktivitas tinggi. Namun, karbon yang dihasilkan dalam jumlah besar dan pada temperatur tinggi akan merusak struktur katalis dan menyebabkan deaktivasi katalis. Untuk menjaga kesetimbangan antara produksi dan difusi karbon pada operasi yang berlangsung kontinu, maka diperlukan temperatur yang rendah. Oleh karena itu, diperlukan reaktor dengan temperatur tinggi dan rendah. Hal inilah yang membuat Weizhong mengembangkan *two-stage fluidized bed reaktor* untuk reaksi dekomposisi katalitik metana (Weizhong, 2004).

Reaktor *two-stage fluidized bed* terdiri dari dua *stage* dengan temperatur berbeda. *Lower stage* menggunakan temperatur rendah yaitu dari 773 K, sedangkan *upper stage* menggunakan temperatur tinggi yaitu dari 773 K sampai

1123 K. Hal ini menyebabkan katalis terfluidisasi dapat mendekomposisi metana dengan aktivitas tinggi pada daerah temperatur tinggi dan karbon dapat berdifusi secara efektif untuk membentuk karbon *nanotube* pada daerah bersuhu rendah dan tinggi.

Usia katalis dapat diperpanjang dengan menggunakan jenis reaktor ini. Selain itu, konversi metana untuk waktu operasi yang lama dapat meningkat dari 20% pada 873 K menjadi 40% pada 1123 K. CNT yang dihasilkan dengan menggunakan reaktor ini pun memiliki mikrostruktur yang sempurna. Sistem reaktor yang digunakan oleh Weizhong ini dapat dilihat pada gambar berikut.



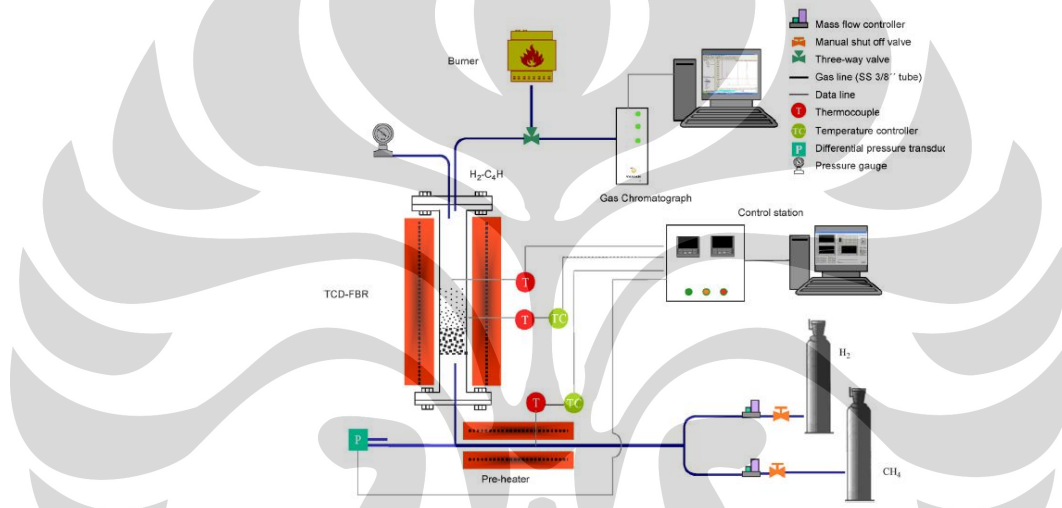
Gambar 2.13. *Two-stage fluidized bed reaktor*

Dari beberapa penelitian perancangan reaktor tersebut, konversi metana yang dihasilkan masih rendah karena waktu tinggal reaktan yang singkat sehingga tidak mendapatkan hidrogen murni. Selain itu, laju alir umpan sulit diatur dikarenakan perubahan ukuran partikel katalis selama reaksi serta terjadi aglomerasi dan *sticking* dari partikel-partikel nanokarbon.

FBR skala pilot seperti pada Gambar 2.14 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 serta 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 masalah 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 serta pengoperasian dilakukan dengan komputer. FBR diharapkan dapat menghasilkan hidrogen dan nanokarbon secara simultan.

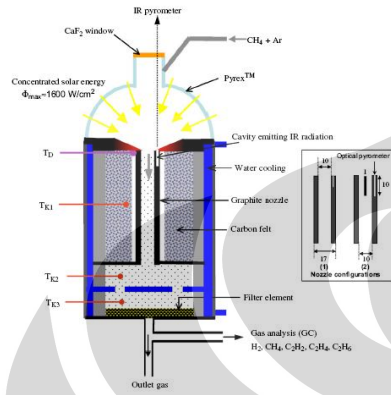


Gambar 2.14. Skema Fluidized Bed Reactor Semi Kontinu Skala Pilot

Hasil reaksi diperoleh 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 2x kecepatan fluidisasi minimum untuk mencegah terjadinya aglomerasi partikel katalis.

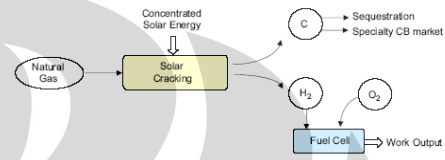
Reaktor kimia bertenaga matahari (*solar chemical Reactor*) pun dilakukan oleh Abanades, Stephane., 2007 (Gambar 2.15) untuk perengkahan metana. Rute ini merupakan rute non-konvensional dalam produksi gas hidrogen dengan matahari sebagai sumber panas. Prinsip kerjanya (Gambar 2.16) adalah menginjeksikan metana dan argon ke bagian atas reaktor yang terbuat dari kaca

saat suhu reaksi sudah tercapai dan dalam keadaan *steady*. Bagian atas reaktor ini mampu menyerap radiasi matahari dan mengalirkan radiasi yang terkonsentrasi tersebut ke daerah reaksi dan grafit dinding reaktor mampu menyimpan radiasi matahari juga.



Gambar 2.15.

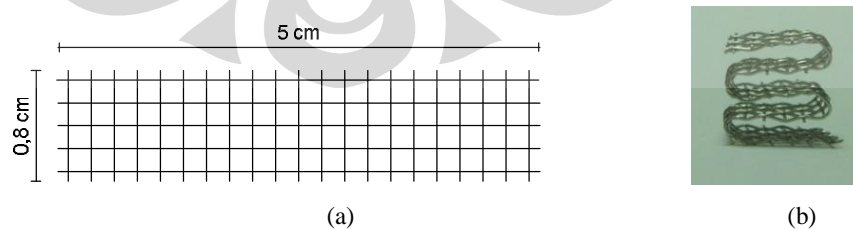
Dinding reaktor solar untuk produksi hidrogen dari perengkahan gas alam



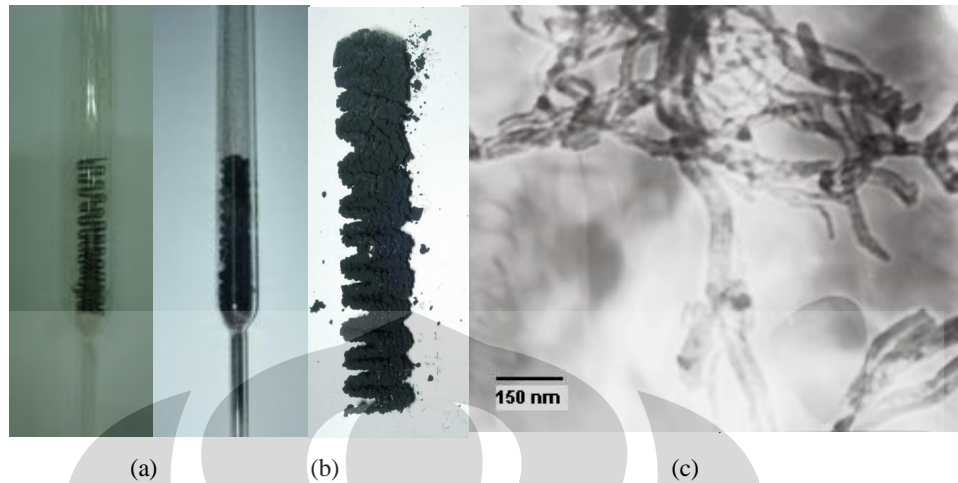
Gambar 2.16. Prinsip Proses Solar

Produk akan mengalir ke bagian bawah melalui filter yang digunakan untuk memisahkan partikel nanokarbon dengan aliran gas. Reaktor ini bekerja pada suhu tinggi ( $> 1500\text{ }^{\circ}\text{C}$ ). Bentuk geometri reaktor akan mempengaruhi besarnya fluks dari radiasi matahari sehingga suhu dinding reaktor harus dimonitor secara kontinu. Produk yang dihasilkan tidak murni hidrogen dan karbon yang terbentuk adalah karbon hitam.

Dalam rangka mencari solusi permasalahan jenis reaktor diatas, Muharam dan Purwanto, 2007 telah menginisiasi riset menggunakan reaktor katalitik terstruktur skala kecil untuk reaksi dekomposisi metana, seperti terlihat pada gambar dibawah.



Gambar 2.17. (a) Substrat anyaman kawat (gauze) baja sebelum dan (b) setelah dibentuk.



Gambar 2.18. Gauze, reaktor katalis terstruktur (a) dan (b) setelah reaksi, (c) hasil karbon *nanotube*

Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai 1400 menit (24 jam) 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 *gauze* dan laju alir umpan dapat diatur dengan mudah tanpa mempengaruhi hidrodinamika sehingga dapat menambah waktu tinggal reaktan yang pada akhirnya meningkatkan konversi. Disamping itu, kualitas *nanotube* yang dihasilkan cukup baik dengan diameter 30-50 nm dan ketebalan dinding 10-20 nm serta kemurnian hidrogen mencapai 99%. Dikarenakan *voidage* yang besar kelemahan reaktor jenis ini *loading* katalis per satuan volume kecil namun dengan hidrodinamika fluida yang tidak terlalu kompleks akan memudahkan dalam *scaling up* ke skala industri.

Tabel 2.2 Rangkuman hasil penggunaan reaktor

Peneliti	Tahun	Jenis Reaktor	Konversi	Pressure drop	Lifetime katalis	Aglomerasi & penyumbatan
Muradov	2000	Spouted bed	7%	Rendah	-	Tidak
	2001	Fluidized bed	20%	Rendah	-	Tidak
Qian, dkk	2003	2-stage fluidized bed	20-40%	Rendah	~ 17 jam	Tidak
Siang-Pao, dkk	2006	Fixed bed	47%	Tinggi	~ 1 jam	Ya
Muharam dan Purwanto	2007	Reaktor katalis terstruktur	59,57%	Rendah	~ 24 jam	Ya setelah waktu yang lama

## 2.8 Residence Time

*Residence time* merupakan waktu yang diperlukan oleh suatu reaksi untuk mencapai konversi tertentu. *Residence time* berbeda dari *space time*. *Space time* adalah waktu yang diperlukan dari fluida masuk hingga fluida keluar dari reaktor. Untuk sistem yang *steady state*, nilainya sama dengan *mass inventory* dari fluida dibagi dengan laju alir massa yang melalui sistem, yaitu:

$$\tau = \frac{V \rho}{Q} = \frac{V}{vA} \quad (2.3)$$

dimana:  $\tau$  = waktu tinggal

$v$  = kecepatan superfisial fluida

$Q$  = laju alir volumetrik fluida, dengan  $Q=v.A$

$A$  = luas spesifik

$\rho$  = densitas

Pada persamaan ini,  $\tau = \frac{V \rho}{Q} = \frac{V}{vA}$  berlaku untuk sistem *steady state*.

Untuk kasus dimana densitas fluida konstan, berlaku:

$$\tau = \frac{V}{vA} \quad (2.4)$$

Persamaan ini berlaku jika tidak ada komponen yang dihasilkan atau rusak selama proses reaksi sehingga berada pada densitas yang konstan. Konstan *residence time* selama *scale-up* dapat diaplikasikan selama reaktor kimia dapat

merubah yield reaksi ataupun selektivitas. Untuk peralatan *heat* dan *mass transfer* dapat digunakan *scale-up* dengan *residence time* yang konstan.

## 2.9 Scale-up Factor

*Throughput scale-up factor* didefinisikan sebagai:

$$\beta = \frac{Q_{pilot} \rho_{pilot} C_{pilot}}{Q_{full} \rho_{full} C_{full}} = \frac{Q_{pilot} C_{pilot}}{Q_{full} C_{full}} \quad (2.5)$$

Bila diasumsikan kedua reaktor pada *full-scale* dan *pilot-scale* memiliki masukan dengan densitas yang sama, maka:

$$\beta = \frac{Q_{pilot}}{Q_{full}} \quad (2.6)$$

Selain itu, asumsikan pula bahwa kedua reaktor beroperasi pada suhu yang sama. Hal ini berarti *residence time* bernilai konstan selama *scale-up*. *Residence time* yang konstan berarti *inventory* sistem, yaitu  $V\rho$  juga diskalakan dengan  $S$ . *Inventory scale-up factor* didefinisikan sebagai:

$$\beta_{inventory} = \frac{Q_{pilot} \rho_{pilot} V_{pilot}}{Q_{full} \rho_{full} V_{full}} = \frac{Q_{pilot} \rho_{pilot} V_{pilot}}{Q_{full} \rho_{full} V_{full}} \quad (2.7)$$

Untuk kasus dimana densitasnya konstan maka berlaku:

$$\beta_{inventory} = \frac{Q_{pilot} V_{pilot}}{Q_{full} V_{full}} \quad (2.8)$$

Jadi, dalam kasus densitas dan *residence time* yang konstan, *inventory scale-up factor* sama dengan *volumetric scale-up factor*, yaitu:

$$\beta_{inventory} = \beta \quad (2.9)$$

## 2.10 Scale-up Reaktor

*Scale-up* dapat didefinisikan sebagai suksesnya *start up* dan operasi komersial unit yang memiliki desain dan prosedur operasi berdasarkan eksperimen dan demonstrasi pada skala operasi yang lebih kecil. Ketika terjadi perubahan pada beberapa bagian dari proses sebagai akibat dari perubahan skala laboratorium menjadi skala komersial, maka kita akan menemukan beberapa masalah. Masalah utama yang dihadapi pada unit komersial adalah adanya pengotor yang seringkali tidak diperhatikan dalam skala laboratorium. Beberapa pengotor ini akan merusak atau merubah struktur katalis dengan deaktivasi katalis atau meningkatkan kuantitas dari pembentukan produk samping. Oleh karena itu, instalasi unit komersial harus mempertimbangkan penghilangan pengotor.



Ada tiga cara untuk meningkatkan kapasitas dari sebuah reaktor *tubular* (Nauman,2001), yaitu:

1. Menambah reaktor identik secara parallel,
2. Memperpanjang reaktor,
3. Memperbesar diameter reaktor, baik dengan menjaga *pressure drop* yang konstan atau *scale-up* menggunakan *geometric similiarity*. *Geometric similiarity* berarti menjaga rasio panjang per diameter (L/D) reaktor konstan selama *scale-up*. *Scale-up* dengan *pressure drop* yang konstan akan memperkecil rasio L/D bila alirannya turbulen.

Prinsip *similarity* menggunakan data data dari skala laboratorium untuk menentukan dimensi dan ukuran dari *scale-up* reaktor yang kita inginkan (dalam skala yang lebih besar) dengan tingkatan proses yang sama. Berdasarkan teori, prinsip *similarity* ini dapat digunakan untuk *scale-up* dengan menjaga fenomena karakteristik dari bilangan tak berdimensi konstan dari reaktor yang lebih kecil ke reaktor yang lebih besar. Akan tetapi, ketika fenomena yang terjadi cukup kompleks maka sulit untuk mempertahankan bilangan tak berdimensi ini tetap konstan.

Pada beberapa kondisi, sulit untuk mendesain suatu reaktor yang memenuhi kriteria yang sebenarnya terjadi di lapangan. Sebagai contoh, situasi menjadi lebih kompleks jika analisis dikaitkan dengan panas yang terbuang ke lingkungan dimana hal ini sering terjadi pada unit komersial. FBR pada unit pilot adalah isothermal tetapi pada skala komersial bersifat adiabatik. Oleh karena itu, pada perkembangannya prinsip similaritas untuk *scale-up* reaktor digantikan dengan permodelan yang memiliki tingkat keakuratan yang lebih tinggi.

Model dapat didefinisikan sebagai pendekatan dari suatu sistem proses. Persamaan matematika yang dimasukkan ke dalam model didapatkan dari studi teori atau dapat juga berupa persamaan empiris yang didapat dari penurunan analisis bilangan tak berdimensi. Pengesetan model dasar menjadi proses kimia yang kompleks memang cukup sulit. Akan tetapi, analisis model dapat mengidentifikasi fenomena yang paling berperan pada studi *scale-up*, menentukan laju, dan perubahan ukuran peralatan pada setiap fenomena.

Perpindahan panas konvektif ke fluida di dalam reaktor bergantung pada tiga bilangan tidak berdimensi, yaitu: bilangan Reynold,  $Re = vD/\nu$ , bilangan Prandtl,  $Pr = C_p \mu / k$  dimana  $k$  merupakan konduktivitas termal, dan rasio panjang terhadap diameter,  $L/D$ . Ketiga hal ini dapat dikombinasikan dalam bilangan Graetz,  $Gz = RePrD/L$ . Korelasi yang sering dipakai untuk koefisien perpindahan panas di dalam untuk aliran laminar dan  $Gz < 75$  adalah:

$$\frac{h}{k} = 1,86 \left( \frac{Pr D}{L} \right)^{1/4} \left( \frac{L}{D} \right)^{1/4} \quad (2.10)$$

Perkiraan umum *scale-up* untuk fluida yang *incompressible* diberikan pada Tabel 2.3. *Scale-up* dengan *pressure drop* yang konstan memberikan hasil yang sama untuk gas dan *liquid*. *Scale-up* dengan *geometric similarity* juga memberikan hasil yang sama bila alirannya laminar.

Tabel 2.3. *Scale-up factor* untuk reaktor *tubular* (Nauman, 2001)

<i>Geometric similarity=constant pressure</i>	
<i>Diameter scaling factor</i>	$S^{1/3}$
<i>Length scaling factor</i>	$S^{1/3}$
<i>Length to diameter ratio</i>	1
<i>Pressure scaling factor, <math>\Delta P</math></i>	1
<i>Reynold scaling factor, <math>Re</math></i>	$S^{2/3}$
<i>Heat transfer area, <math>A_{ext}</math></i>	$S^{2/3}$
<i>Inside coefficient, <math>h</math></i>	$S^{-1/9}$
<i>Coefficient times area, <math>h A_{ext}</math></i>	$S^{5/9}$

## 2.11. Bilangan Reynold

Dalam mekanika fluida, bilangan Reynold adalah rasio antara gaya inersia ( $\rho v_s^2$ ) terhadap gaya viskos ( $\mu/L$ ) yang mengkuantifikasikan hubungan kedua gaya tersebut dengan suatu kondisi aliran tertentu (Wikipedia,1999). Bilangan ini digunakan untuk mengidentifikasi jenis aliran yang berbeda, misalnya laminar dan turbulen. Bilangan Reynold merupakan salah satu bilangan tak berdimensi yang paling penting dalam mekanika fluida dan digunakan, seperti halnya dengan bilangan tak berdimensi lain, untuk memberikan kriteria dalam menentukan *dynamic similitude*. Jika dua pola aliran yang mirip secara geometris, mungkin

pada fluida yang berbeda dan laju alir yang berbeda pula, memiliki nilai bilangan tak berdimensi yang relevan, keduanya disebut memiliki kemiripan dinamis. Untuk *scale-up* dengan *geometric similarity*, berlaku perbandingan Reynold, yaitu:  $\frac{v_2 L_2}{\mu_2} = \frac{v_1 L_1}{\mu_1}$  (Nauman, 2001) dengan rumus bilangan Reynold adalah:

$$Re = \frac{v L \rho}{\mu} \quad (2.11)$$

dimana:

- $v_s$  = kecepatan fluida,
- $L$  = panjang karakteristik,
- $\mu$  = viskositas absolut fluida dinamis,
- $\rho$  = kerapatan (densitas) fluida.

Misalnya pada aliran dalam pipa, panjang karakteristik adalah diameter pipa, jika penampang pipa bulat, atau diameter hidraulik, untuk penampang tak bulat.

## 2.12. Teknik Preparasi Katalis dengan Metode sol-gel

Teknik preparasi katalis berpengaruh pada sifat partikel katalis yang dihasilkan, seperti luas permukaan kontak, diameter partikel katalis, dan lain sebagainya. Teknik preparasi yang paling sering digunakan pada dekomposisi katalitik metana adalah impregnasi, presipitasi atau ko-presipitasi, dan sol-gel. Pada penelitian ini akan digunakan metode sol-gel agar katalis dapat dilapiskan pada kawat *stainless steel*.

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 kontinu (gel). Keuntungan memakai metode sol-gel adalah:

- Stabilitas termal yang tinggi
- Luas permukaan katalis yang tinggi
- Ketahanan terhadap pelarut yang tinggi
- Stabilitas mekanik yang tinggi
- Permukaan dapat dimodifikasi

Pada proses sol-gel digunakan bahan prekursor. Prekursor adalah substrat yang digunakan untuk membuat katalis dengan komposisi awal yang sesuai secara

stoikiometrik sehingga komposisi katalis yang dihasilkan didapat dari dekomposisi substrat yang digunakan. Prekursor yang umum digunakan adalah logam garam anorganik atau senyawa logam organik yang dikelilingi oleh ligan yang reaktif seperti logam alkoksida ( $M(OR)_y$ ), dimana R untuk gugus alkil. Logam alkoksida yang paling banyak digunakan karena sifatnya yang mudah bereaksi dengan air antara lain Tetrametoksisilan (TMOS), Tetraetoksisilan (TEOS), dan alkoksida lainnya seperti Alumunium isopropoksida (ALIP) atau Alumunium sebutoksida.

### 2.12.1. Preparasi Katalis terstruktur *gauze*

Dibandingkan dengan *conventional bed* dari katalis *pellet*, katalis yang dibuat dari *wire mesh* logam memiliki banyak keuntungan termasuk *pressure drop* yang rendah, konduktivitas termal yang tinggi, kekuatan mekanik, aliran fluida yang seragam, dan lebih dikitnya daerah stagnant. Katalis *gauze* dari logam mulia (seperti Pt, Ru, Ag) telah banyak digunakan untuk produksi asam nitrat dari amonia dan formaldehid dari metanol. Katalis *gauze* ini memiliki luas permukaan spesifik yang rendah dan harganya mahal sehingga diusahakan untuk memakai *wire meshes* yang terbuat dari bahan yang lebih murah seperti besi dan *stainless steel* sebagai support dari komponen inti aktif.

Penelitian yang dilakukan oleh Gao, 2008 menggunakan *mesh* yang terbuat dari SS 304 sebagai *support* katalis. Permukaan dari *wire mesh* awalnya sangat halus sehingga sulit untuk melapisinya dengan katalis. Berhubungan dengan *loading* katalis, *mesh* dihembuskan dengan *fine grits* untuk meningkatkan kekasaran permukaan dan meningkatkan luas permukaan spesifik katalis dari  $0.01 \text{ m}^2/\text{g}$  menjadi  $0.3 \text{ m}^2/\text{g}$ . *Mesh* yang telah diproses dengan *sand blasted* direndam dalam larutan asam nitrat (30%) selama 5 menit untuk menciptakan lapisan nitrat (seperti nikel nitrat atau kromium nitrat) pada permukaan *mesh* yang lebih cocok dan reaktif dengan prekursor katalis nitrat. *Mesh* berikutnya dicelupkan dalam larutan prekursor katalis. Larutan prekursor katalis disiapkan dengan melarutkan lanthanide nitrat dan nikel nitrat dalam larutan air dan asam sitrat (20 g asam sitrat dalam 500 ml air suling) berdasarkan rasio stoikiometri dari  $\text{La/Ni}=2$  ( $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 0.866 g;  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 0.291 g. 500 ml  $\text{H}_2\text{O}$ ).

Awalnya larutan dipanaskan sampai  $80^{\circ}\text{C}$  dengan pengadukan konstan sehingga larutan menjadi sirup viskos homogen. *Mesh* yang telah dicelup dalam larutan prekursor katalis diangkat dan dikeringkan pada  $100^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam dan dikalsinasi dengan aliran  $\text{N}_2$  pada  $800^{\circ}\text{C}$ . Untuk menghilangkan katalis yang terikat lemah pada *mesh*, *mesh* dialirkan dengan udara terkompresi dan dicuci dalam *ultrasonic bath* sehingga hanya katalis yang kuat yang tetap menempel pada *mesh*. *Mesh* yang telah dilapisi oleh katalis ( $\text{La}_2\text{NiO}_4/\text{SS}$ ) lalu direduksi dengan aliran  $\text{H}_2/\text{N}_2$  (v/v, 10/90, 30 ml/min) untuk memperoleh katalis metal Ni dengan ukuran nano.

### 2.12.2. 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  $\text{ABO}_3$ . 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  $\text{LaNiO}_3$  yang diperoleh dari  $\text{Ni}_2\text{O}_3$  dan  $\text{La}_2\text{O}_3$ . 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*.

Tabel 2.4. Korelasi Data Konsentrasi Asam Sitrat dengan Metal Ion

Asam sitrat : Ni dan La (rasio atom)	Yield CNT (g CNT/g LaNiO <sub>3</sub> .h)	Permukaan kristal partikel Ni	Ukuran partikel Ni/nm
0:1	5.15		
1:1	8.47		
2:1	13.46	(111)	27.5
		(200)	13.7
3:1	4.07	(111)	22.5
		(200)	68.6
4:1	6.70		
5:1	8.21		
6:1	7.60		
7:1	6.48		
8:1	6.81		

### 2.13. Teknik Pelapisan *Dip Coating*

Beberapa teknik pelapisan (*coating*) yang dapat digunakan untuk membentuk lapisan tipis katalis pada substrat, antara lain: pencelupan (*dip coating*), *spin coating*, dan *spraying*. Pada penelitian ini digunakan teknik pencelupan atau *dip coating*.

Teknik *dip-coating* merupakan teknik pelapisan *sol-gel* yang paling sederhana. Pada prinsipnya, teknik *dip coating* ini dilakukan dengan mencelupkan substrat yang akan dilapisi ke dalam larutan sol dan diangkat dengan kecepatan tertentu pada suhu dan kondisi atmosfer yang terkontrol. Metode ini telah luas digunakan terutama untuk mendapatkan lapisan yang seragam dengan ketebalan kurang lebih 100 nm.

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. Cara yang paling mudah untuk mendapatkan variasi ketebalan adalah dengan mengatur kecepatan pengangkatan. Korelasi antara variabel tersebut dapat dilihat pada persamaan berikut:

$$h = 0,94 \times \frac{(\eta \times v)^{2/3}}{\gamma^{1/6} (\rho \times g)^{1/2}} \quad (2.14)$$

dimana: h = ketebalan lapisan

= viskositas

v = kecepatan pengangkatan

= tegangan permukaan

= densitas

g = percepatan gravitasi

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

- Pencelupan material yang akan dilapisi ke dalam sol
- Pengangkatan material dari larutan sol
- Pengeringan sol, air, dan alkohol berlebih

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

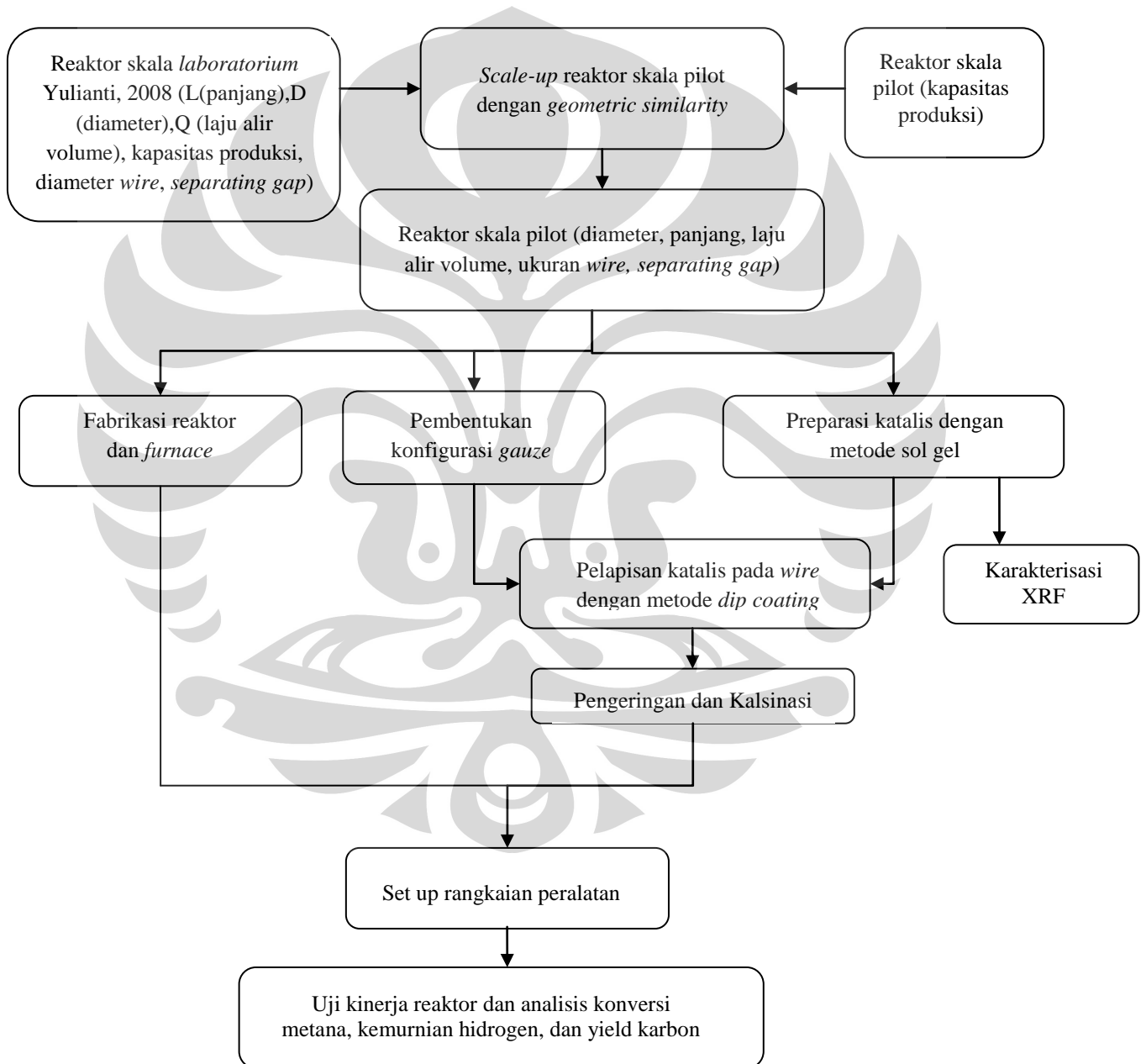




## BAB III METODE PENELITIAN

### 3.1 Diagram Penelitian

Penelitian akan dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dan Bahan Alam, Departemen Teknik Kimia, Universitas Indonesia. Penelitian dilakukan sesuai dengan diagram alir sebagai berikut:



Gambar 3.1. Diagram Alir Penelitian

### 3.2 Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan selama penelitian adalah sebagai berikut:

- Beaker Glass
- Gelas ukur
- Spatula
- Pinset
- *Hotplate & Magnetic Stirrer*
- Timbangan digital
- Cawan keramik
- *Stop watch*
- Termometer
- Tabung kuarsa
- *Soap bubbler*
- *Flowmeter dan Mass Flow Controller*
- *Digital atmospheric furnace*
- *Digital tube furnace*
- GC (*Gas Chromatography*)
- Alat XRD (*X-Ray Diffraction*)
- Alat XRF (*X-Ray Fluoresence*)

Bahan-Bahan yang digunakan selama penelitian ini adalah sebagai berikut:

- 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
- Asam Nitrat,  $\text{HNO}_3$
- Kawat stainless steel (bentuk *wire mesh*)
- Aseton
- Gas Metana
- Gas Hidrogen
- *Deionized (demineralized) water*

### 3.3 Prosedur Penelitian

#### Tahap 1: Scale-up Reaktor dengan *Geometric Similarity*

Tahap ini diawali dengan menargetkan kapasitas produksi nanokarbon sebanyak 1 kilogram per hari.

1. Menentukan basis waktu produksi, yaitu 24 jam, dengan asumsi awal bahwa waktu hidup katalis 24 jam untuk mendukung reaksi dekomposisi katalitik metana.

2. Dari reaktor skala laboratorium [Yulianti, 2008], kita memperoleh data diameter reaktor, panjang reaktor, laju alir metana, diameter *wire*, *separating gap* (jarak antara 1 *wire* dengan *wire* lain), jumlah *meshes*/inch, dan kapasitas produksi.
3. Dari data reaktor skala pilot, kita mengetahui kapasitas produksi yang diinginkan, yaitu 1 kg nanokarbon/ hari.
4. Menghitung *scale-up* rasio, yaitu perbandingan antara kapasitas produksi skala pilot dan skala laboratorium.
5. Menghitung laju alir metana untuk reaktor skala pilot.
6. Menghitung dimensi reaktor skala pilot, yaitu diameter dan panjang reaktor dengan *geometric similarity*.
7. Menghitung jarak antar *wire* yang dibutuhkan dan menyesuaikannya dengan *wire* yang tersedia.
8. Menghitung luas katalis yang diperlukan pada reaktor skala pilot.
9. Menghitung jumlah *wire sheet* ( $n_2$ ), *separating gap*, dan panjang *wire* pada reaktor skala pilot.
10. Menghitung total katalis yang dibutuhkan.

**Tahap 2: Pembentukan konfigurasi wire**

1. Memotong *wiremesh* yang akan dipakai dengan ukuran seperti hasil perhitungan pada tahap 1.
2. Membentuk *wiremesh* yang sudah dipotong dengan struktur seperti pada gambar berikut dengan *separating gap* (jarak antara satu *wire sheet* dengan *wire sheet* lainnya yang berdekatan) sesuai perhitungan tahap 1.



Gambar 3.2. Bentuk katalis terstruktur

**Tahap 3: Preparasi Katalis**

Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni/Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang dipreparasi dengan metode sol-gel sebagai berikut:

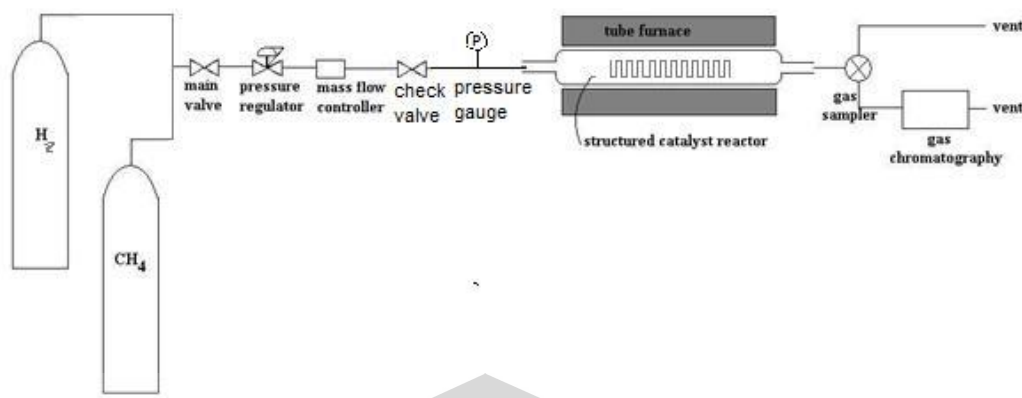
1. Seluruh logam nitrat yang terdiri dari 477 gram  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 198 gram  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , dan 307,25 gram  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dilarutkan ke dalam *deionized water* sebanyak 1100 ml.
2.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

#### **Tahap 4: Pelapisan Katalis**

1. *Wiremesh* (substrat) yang telah dibentuk direndam di dalam aseton untuk menghilangkan pengotornya, lalu dicuci dengan air untuk membilas aseton yang masih menempel di permukaan kawat, lalu dikeringkan.
2. *Wiremesh* (substrat) 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 lalu dikeringkan di dalam *digital atmospheric furnace* pada temperatur  $130^\circ\text{C}$  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. Substrat dikalsinasi pada temperatur  $700^\circ\text{C}$  selama 1 jam dalam *digital atmospheric furnace*.
9. Menimbang berat akhir substrat ( $W_i$ ).

#### **Tahap 7: Set-Up Rangkaian Peralatan**

1. Merangkai peralatan yang akan dipakai dan menghubungkan peralatan tabung gas metana, *mass flow controller*, *check valve*, *pressure gauge*, reaktor, *bubble soap*, *gas sampling*, aliran *vent*, dan GC seperti pada Gambar 3.3.
2. Mengkalibrasi laju alir *mass flow controller* dan GC.



Gambar 3.3. Rangkaian Peralatan

### **Tahap 8: Kalibrasi Alat**

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

Sedangkan 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 Analisis Produk Nanokarbon dan Hidrogen**

Uji kinerja reaktor dilakukan setelah katalis dibuat dan kalibrasi dilakukan. Adapun tahapannya adalah sebagai berikut:

1. Menimbang berat *gauze* yang telah dilapisi katalis.
2. Memasukkan katalis terstruktur *gauze* dalam reaktor.
3. Mengatur temperatur reaksi dalam *tube furnace* pada 700 °C .
4. Mengalirkan gas hidrogen dengan laju alir 25 L/jam selama 1 jam untuk proses reduksi.

5. Menghentikan aliran hidrogen lalu mengalirkan umpan metana pada suhu dan tekanan atmosferik, dengan laju alir 20 L/jam untuk uji stabilitas dan 6 L/jam untuk uji aktivitas.
6. Mengambil data laju alir produk, *peak area* produk setiap periode tertentu (5 menit) selama 20 menit dan selanjutnya data diambil setiap 15 menit dengan Gas Chromatography (GC). Untuk uji stabilitas katalis, data diambil selama 17 jam. Untuk uji aktivitas, data diambil selama 20 menit.
7. Menghentikan aliran metana.
8. Menurunkan suhu *furnace* menjadi suhu ruang lalu mengeluarkan katalis terstruktur dari dalam reaktor.
9. Menimbang berat *gauze*.
10. Menimbang berat nanokarbon yang telah terbentuk pada katalis terstruktur *gauze*.
11. Mengolah data untuk menghitung parameter kinerja produksi.

Kinerja produksi yang diamati meliputi konversi metana, yield nanokarbon serta kemurnian hidrogen. Konversi metana didefinisikan sebagai persentase metana yang bereaksi terhadap metana yang dimasukkan ke reaktor.

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

Sementara itu definisi yield karbon didefinisikan sebagai massa karbon yang dihasilkan dibandingkan dengan massa katalis.

$$Yield C_4 = \frac{\text{massa karbon yang dihasilkan}}{\text{massa katalis}} \times 100\% \quad (3.2)$$

Sedangkan kemurnian hidrogen didefinisikan sebagai jumlah hidrogen yang dihasilkan dibandingkan jumlah total produk gas dan sisa metana yang tidak bereaksi (dalam satuan mol).

$$Kemurnian H_2 = \frac{[H_2] \text{ produk}}{\text{total produk gas dan sisa reaktan}} \times 100\% \quad (3.4)$$



## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

### 4.1 *Scale-up* Reaktor Katalis Terstruktur Gauze

Reaktor katalis terstruktur skala pilot dalam penelitian ini dibuat dengan target menghasilkan 1 kilogram produk nanokarbon/hari. Perhitungan dilakukan dengan prinsip *geometric similarity* dari data reaktor skala laboratorium yang telah ada sebelumnya [Yulianti, 2008] dan basis waktu operasi 24 jam. Dari reaktor skala laboratorium Yulianti, 2008 diperoleh data sebagai berikut:

- diameter reaktor = 4,26 cm
- panjang reaktor = 17 cm
- laju alir metana = 21 L/h
- diameter *wire* = 0,33 mm
- *separating gap* = 1 mm
- jumlah *meshes/inch* = 16
- kapasitas produksi = 150 gr C/day
- loading katalis rata-rata = 0,001099 gr katalis/cm<sup>2</sup>

Dari hasil percobaan yang dilakukan oleh Yulianti, 2008 diperoleh hasil sebagai berikut:

- Pada suhu 700°C, konversi metana tertinggi adalah 94.87%.
- Pada reaktor katalis terstruktur ini, tidak terjadi *pressure drop* yang dapat mengakibatkan berakhirnya reaksi. Reaksi akan berakhir bila katalis terdeaktivasi akibat tertutupnya permukaan katalis oleh deposit karbon. *Lifetime* katalis yang diuji paling lama adalah 33 jam dan masih dapat berlanjut.
- Produk hidrogen yang dihasilkan memiliki kemurnian tinggi yang sebanding dengan konversi metana. Pada suhu 700°C, kemurnian tertingginya mencapai 95.14%.
- Untuk reaksi selama 8.4 jam, produk karbon memiliki yield 32.85 gr karbon / gr katalis untuk suhu 700°C.
- Dengan TEM, diketahui bahwa diameter nanokarbon yang dihasilkan berkisar antara 50-100 nm.



Dari hasil percobaan di atas maka kita melakukan *scale-up* dengan menggunakan prinsip *geometric similarity*. Dari hasil perhitungan dengan menggunakan *scale-up rasio* ( $S$ ) = 6,67 kita memperoleh:

- Laju alir metana = 140 L/h
- Diameter reaktor = 8 cm
- Panjang reaktor = 32 cm

Berikutnya, dengan menggunakan perbandingan bilangan Reynold =  $S^{2/3}$ , diperoleh spesifikasi *wire mesh* yang dibutuhkan, yaitu:

- Jarak antar dua buah *wire* = 1,89 mm
- Diameter *wire* = 0,65 mm
- *Meshes/inch* = 10

Dengan menggunakan perbandingan luas permukaan katalis =  $S^{2/3}$ , diperoleh:

- Luas permukaan katalis = 2938,982 cm<sup>2</sup>

Dengan mengetahui luas permukaan katalis ini maka kita dapat menghitung kebutuhan *wire mesh* yang dibutuhkan dan konfigurasi, yaitu:

- Panjang *wiremesh* = 3497 mm
- Jumlah *wire sheet* = 63
- *Separating gap* = 5,161 mm

Selanjutnya, dengan mengasumsikan bahwa loading katalis sama dengan Yulianti, 2008, yaitu 0,001099 gr/cm<sup>2</sup> maka kita dapat menghitung kebutuhan katalis untuk reaktor skala pilot, yaitu 3,23 gr katalis. Berikut adalah gambar reaktor dari Yulianti, 2008:



Gambar 4. 1 Hasil rancangan reaktor katalis terstruktur skala laboratorium (Yulianti, 2008)

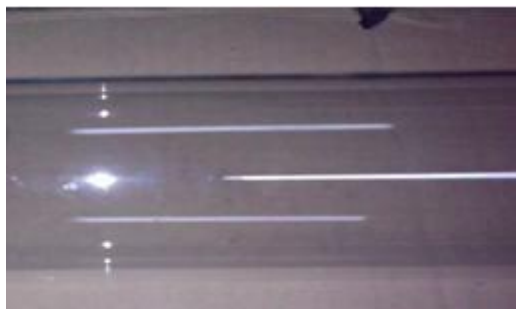
Reaktor skala laboratorium ini masih memiliki beberapa kekurangan dalam hal desainnya, yaitu:

- Adanya dua masukan sisi diagonal pada bagian atas reaktor yang menyebabkan adanya gas yang dapat bocor melewati sambungan tersebut.
- Sambungan antara reaktor dan penutupnya secara mekanik padahal keduanya terbuat dari bahan yang berbeda. Reaktor terbuat dari tabung kuarsa, sedangkan penutupnya terbuat dari pyrex padahal keduanya memiliki titik leleh yang berbeda. Pyrex memiliki titik leleh pada suhu  $820^{\circ}\text{C}$  dan kuarsa memiliki titik leleh pada suhu  $1650^{\circ}\text{C}$ . Hal ini menyebabkan kecepatan pemuaiannya dan penyusutan yang berbeda sehingga bila terjadi pemanasan dan pendinginan hal ini dapat menyebabkan pecahnya reaktor.
- Sistem sambungan reaktor dan penutupnya yang menggunakan kawat per sehingga memungkinkan sambungannya tidak kuat dan dapat menyebabkan kebocoran.

Oleh sebab itu, untuk reaktor skala pilot ini dilakukan perubahan desain reaktor sebagai berikut:

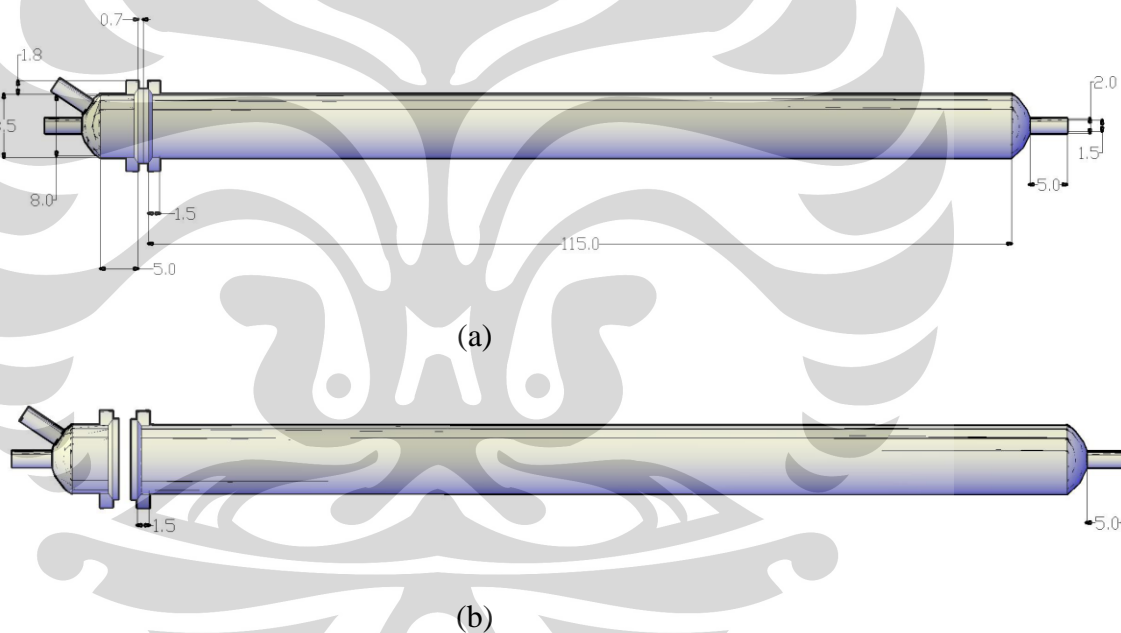
- Kedua masukan sisi diagonal pada bagian atas reaktor dihilangkan.
- Sambungan antara reaktor dan penutupnya walaupun terbuat dari bahan yang berbeda, yaitu reaktor dari tabung kuarsa dan penutupnya dari pyrex tetapi bidang sentuhnya tidak ada karena menggunakan sistem penyambungan dengan menggunakan *seal* yang disambung dengan menggunakan silikon.

Reaktor yang dapat direalisasikan disesuaikan dengan ukuran yang telah dihitung dan didapatkan tabung kuarsa yang dijual di pasaran dengan ukuran diameter dalam 8 cm dengan ketebalan 0,25 cm dan panjang 120 cm. Reaktor katalis terstruktur *gauze* ini berbahan dasar kuarsa. Hal ini dikarenakan suhu reaksi yang cukup tinggi yaitu  $700^{\circ}\text{C}$  sehingga membutuhkan bahan dengan titik cair yang lebih tinggi daripada suhu tersebut. Kuarsa memiliki titik leleh  $1650^{\circ}\text{C}$  sehingga sesuai untuk digunakan sebagai bahan dasar tabung reaktor dalam penelitian ini.



Gambar 4.2. Tabung kuarsa

Tabung kuarsa ini selanjutnya 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 di bawah ini.



Gambar 4.3. Desain Reaktor Katalis Terstruktur (a) sesudah ditutup, (b) sebelum ditutup

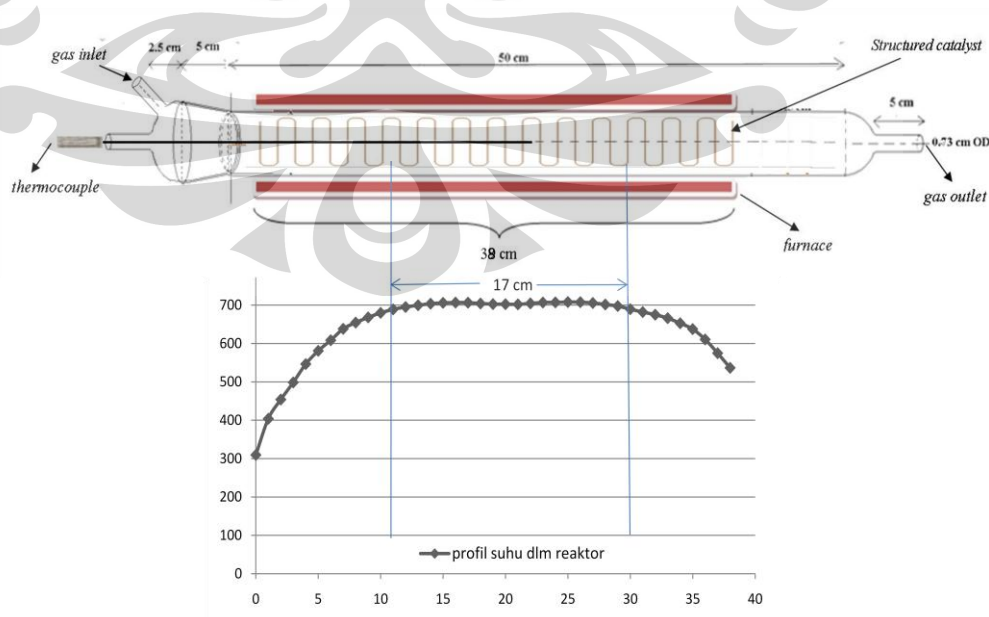
Reaktor didesain dengan dua masukan yaitu sisi horizontal dan sisi diagonal di atas masukan yang horizontal. Masukan bagian atas berfungsi sebagai masukan gas dan inlet horizontal merupakan masukan termokopel yang digunakan untuk memvalidasi suhu yang terdapat di dalam reaktor sehingga reaksi tepat terjadi pada suhu  $700^{\circ}\text{C}$ . Reaktor didesain dengan penutup untuk memudahkan *loading* dan *unloading* katalis terstruktur *gauze* sebelum dan

sesudah reaksi. Penutup reaktor disambungkan dengan reaktor menggunakan *seal* untuk mencegah terjadinya kebocoran.



Gambar 4.4. *Seal* penutup reaktor

Setelah fabrikasi reaktor, maka kita mendesain *furnace* yang akan digunakan untuk memanaskan reaktor untuk proses dekomposisi katalitik metana pada suhu  $700^{\circ}\text{C}$ . *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* disesuaikan dengan panjang reaktor (115cm), panjang substrat katalis (32 cm), serta profil suhu yang terjadi pada bagian dalam *furnace* berdasarkan percobaan didapatkan bahwa suhu  $700^{\circ}\text{C}$  di dalam *furnace* berada pada jarak 12 cm dari bagian depan *furnace* (Yulianti, 2009). Dari hasil percobaan oleh Yulianti, 2009 dengan menggunakan reaktor skala laboratorium diperoleh hasil sebagai berikut:



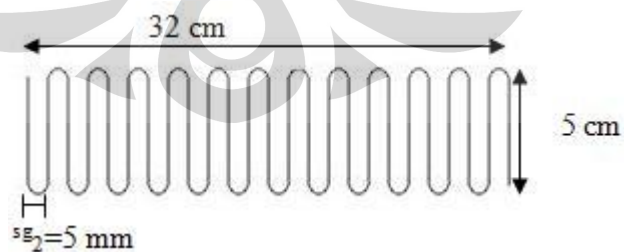
Gambar 4. 5. Profil temperatur dalam reaktor

Dari Gambar 4.5 di atas dapat dilihat bahwa suhu reaksi, yaitu  $700^{\circ}\text{C}$  diperoleh pada jarak 12 cm dari bagian depan *furnace*. Untuk kemudahan *loading* dan *unloading* reaktor maka *furnace* didesain agar dapat dibuka pada bagian tengah. *Furnace* yang akan difabrikasi didesain dengan ukuran sebagai berikut.



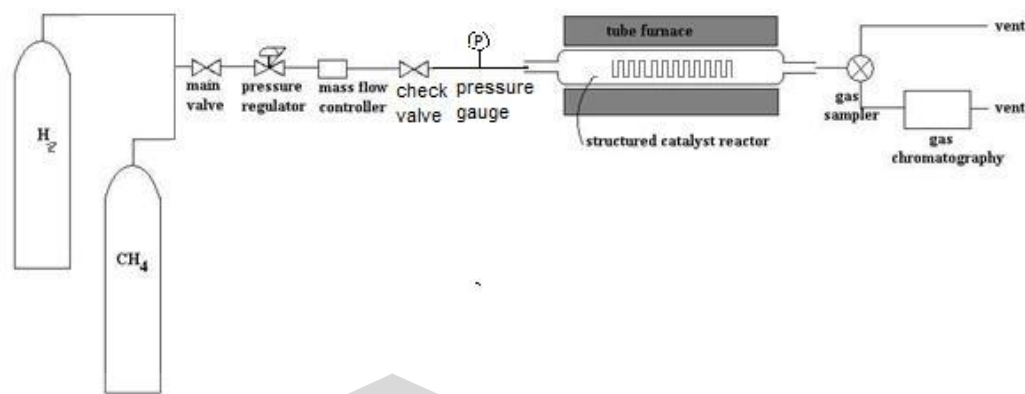
Gambar 4.6. Desain *furnace*

*Wiremesh* yang digunakan terbuat dari *stainless steel* 304 yang akan digunakan sebagai substrat katalis. Struktur substrat *wire* yang digunakan terbuat dari *stainless steel* karena *wire* akan digunakan untuk reaksi pada suhu  $700^{\circ}\text{C}$  sehingga bahan yang digunakan harus memiliki titik leleh di atas suhu reaksi tersebut. *Stainless steel* 304 memiliki titik leleh  $1920^{\circ}\text{C}$  sehingga *stainless steel* ini cocok digunakan sebagai substrat katalis. *Wiremesh* yang awalnya dalam bentuk lembaran dibentuk secara manual sehingga membentuk substrat yang kita inginkan sesuai dengan desain sebagai berikut:



Gambar 4.7. Desain *wiremesh*

Rangkaian peralatan yang digunakan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana ini ditunjukkan pada gambar di bawah ini.



Gambar 4.8. Rangkaian peralatan

Masukan pada sistem ini ada dua, yaitu gas metana yang merupakan sumber gas yang digunakan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana dan gas hidrogen yang digunakan untuk proses reduksi. Kedua gas ini disambung dengan sambungan T yang disambungkan dengan *valve* untuk mengatur gas yang diinginkan saat proses produksi. Pipa gas masukan terhubung dengan *digital mass flow controller* tipe Sierra 1800MX untuk menentukan laju alir gas yang masuk kemudian terhubung dengan *check valve* yang berfungsi untuk mencegah aliran balik dan dihubungkan lagi dengan *pressure gauge* sebagai *safety* instrumen yang digunakan untuk melihat tekanan yang ada pada aliran masukan reaktor selama proses reaksi.

Aliran keluaran disambungkan dengan *gas sampler* yang dapat mengatur aliran keluar menuju *vent (discharge)* atau menuju *Gas Chromatography (charge)*. Bila menuju *vent*, maka gas produk akan dialirkan menuju *soap bubbler* yang berfungsi untuk mengetahui laju alir keluaran kemudian dibuang ke luar laboratorium dengan aman. Sedangkan bila diteruskan ke GC, maka dapat diambil data *peak* yang terdeteksi serta *peak area* masing-masing komponen lalu dibuang. Berikut adalah rangkaian peralatan yang telah difabrikasi berikut tampilan dan letak tiap peralatan.



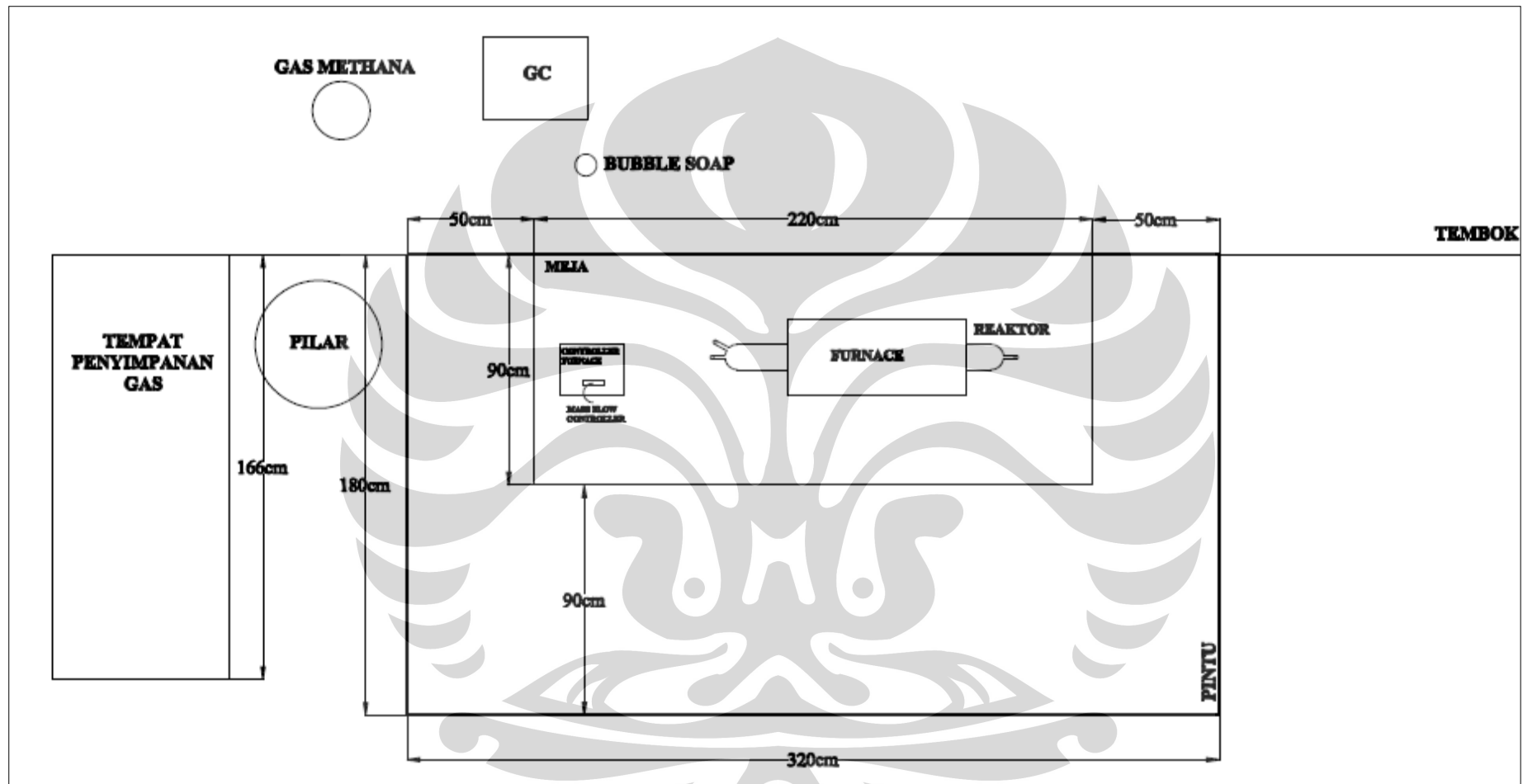
Gambar 4.9. *Furnace* dan reaktor



Gambar 4.10. Rangkaian peralatan



Gambar 4.11. *Gas Chromatography*



Gambar 4.12. Denah peralatan



#### 4.2. Preparasi dan Karakterisasi Katalis

Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni, Cu, dan Al. Preparasi katalis dilakukan dengan metode sol gel, yaitu 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 pada suhu  $80^\circ\text{C}$  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  $80^\circ\text{C}$  dan *magnetic stirrer* yang bertujuan untuk mempercepat proses pelarutan.

Katalis yang akan digunakan untuk penelitian ini adalah katalis dengan komposisi 2:1:1. 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. Larutan katalis yang terbentuk berwarna hijau tua seperti pada gambar berikut.



Gambar 4.13. Larutan katalis

Sebagian larutan yang telah dibuat diambil sebagai sampel untuk karakterisasi katalis. Setelah dikeringkan pada suhu  $130^\circ\text{C}$ , dikalsinasi pada suhu  $700^\circ\text{C}$  selama 1 jam 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.

Tabel 4.1. Komposisi Atomik / Molar Katalis

Unsur	At/mole % berdasarkan XRF
Ni	52,99
Cu	31,26
Al	15,75

Fraksi atom/mol Ni:Cu:Al diharapkan 50:25:25; namun dari hasil karakterisasi menunjukkan angka yang berbeda. Hal ini dapat disebabkan oleh kesalahan pada penimbangan bahan dasar katalis, atau kesalahan alat XRF dalam membaca peak yang terdeteksi.

#### 4.3 Pelapisan Katalis pada Gauze

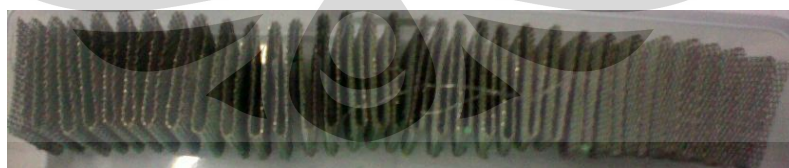
*Gauze* sebagai substrat pada penelitian ini awalnya dibersihkan dengan direndam dalam larutan aseton untuk menghilangkan pengotor yang masih menempel. Setelah itu, *gauze* direndam dalam larutan asam nitrat untuk mengasarkan permukaannya sehingga katalis dapat menempel pada permukaan *gauze*. Setiap tahapan diikuti dengan pengeringan pada suhu 130°C selama 1 jam agar tidak ada air yang menempel pada *gauze* yang akan mempengaruhi berat awalnya pada saat penimbangan sebelum dilakukan *coating*.

Setelah tahapan di atas maka *gauze* ditimbang (dicatat  $W_0$ ). Setelah itu, *gauze* dicelupkan pada larutan katalis (metode ini disebut *dip-coating*) selama 30 menit sehingga katalis menempel dalam bentuk film tipis pada permukaan kawat. Kawat diangkat dengan kecepatan konstan menggunakan integrator seperti pada gambar berikut.



Gambar 4.14. Integrator untuk *Dip Coating*

Hal ini dilakukan agar larutan terlapis secara merata pada permukaan kawat. Lalu, *wiremesh* yang sudah terlapis larutan katalis dikeringkan dalam *digital furnace* dengan suhu  $130^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam, untuk menghilangkan sebagian kandungan air yang terdapat dalam larutan. Setelah dikeringkan, substrat ditimbang kembali beratnya (dicatat  $W_1$ ). Kemudian pencelupan, pengeringan dan penimbangan dilakukan berulang sampai *loading* katalis pada substrat makin besar. Dalam pelaksanaan, prosedur *dip-coating* dilakukan 3 kali, sehingga diperoleh  $W_1$ ,  $W_2$ , dan  $W_3$ . Hal ini disebabkan pada penimbangan ketiga tidak terjadi kenaikan berat katalis lagi, melainkan terjadi penurunan. Hal ini disebabkan oleh pada pelapisan kedua banyak terdapat padatan-padatan katalis yang menempel pada lubang antar *wire* sehingga menutupi lubang antar *wire*. Pada pelapisan ketiga, padatan katalis yang menempel antara katalis tersebut lepas sehingga beratnya juga menurun. Berikut adalah gambar katalis yang telah dilapiskan ke substrat dan telah dikeringkan.



Gambar 4.15. Substrat setelah *dip-coating* dan pengeringan

Setelah itu, substrat dikalsinasi pada suhu  $700^{\circ}\text{C}$ . Kalsinasi bertujuan untuk menghilangkan senyawa volatil serta kation dan anion yang tidak stabil yang ada sebelumnya. Kalsinasi dilakukan selama 1 jam. Setelah kalsinasi, substrat ditimbang kembali (dicatat  $W_4$ ) dan berikut adalah hasilnya.



Gambar 4. 16. Substrat setelah kalsinasi

Secara umum,  $W_4$  akan memiliki berat yang lebih ringan daripada  $W_3$ , sebab seluruh sisa air menguap dan sebagian katalis rontok sehingga mengurangi berat substrat. Namun secara umum,  $W_4$  lebih besar daripada  $W_0$  sehingga berat katalis bersih dapat dihitung. Hasil pelapisan dapat dilihat dari tabel 4.2 berikut.

Tabel 4. 2. Loading Katalis pada Substrat

	Percobaan I (uji aktivitas)	Percobaan II (uji lifetime katalis)
$W_0$ (g)	348,49	341,92
$W_1$ (g)	350,17	343,48
$W_2$ (g)	353,64	349,18
$W_3$ (g)	350,32	343,73
$T_{\text{kalsinasi}}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	700	700
$W_4$ (g)	431,4	419,76
$W, W_3 - W_0$ (g)	1,83	1,81
$W_4 - W_0$ (g)	82,91	77,84
$A_{\text{wiremesh}}$ ( $\text{cm}^2$ )	2938,982	2938,982
$W/A$ ( $\text{g}/\text{cm}^2$ gauze)	0,000623	0,000616

Dari tabel di atas, kita memperoleh *loading* katalis, yaitu berat katalis per satuan luas *gauze* yang menandakan jumlah katalis tiap satuan luas pada *gauze* yang dapat digunakan sebagai tempat pertumbuhan nanokarbon. Loading katalis dari kedua katalis tidak berbeda jauh, yaitu  $0,000623 \text{ g}/\text{cm}^2$  *gauze* dan  $0,000616 \text{ g}/\text{cm}^2$  *gauze*.

Dapat dilihat juga bahwa setelah kalsinasi terdapat kenaikan berat *gauze* yang sangat besar. Hal ini bertentangan dengan fungsi kalsinasi, yaitu menghilangkan senyawa volatil serta kation dan anion yang tidak stabil yang ditambahkan sebelumnya.

Hal ini mungkin disebabkan oleh terjadinya oksidasi pada *wiremesh*. *Wiremesh* yang digunakan adalah jenis stainless steel 304 yang dapat memiliki

kandungan logam lain, yaitu mengandung 0,03% C; 2% Mn; 18-20% Cr; Si 1%, P 0,045%, dan 0,03% S. Pada saat kalsinasi, dapat terjadi oksidasi sehingga logam membentuk ikatan dengan oksigen membentuk oksida dan menyebabkan peningkatan berat *wiremesh* yang sangat besar. Oleh sebab itu, pada perhitungan *loading* katalis digunakan berat sebelum kalsinasi ( $W_3$ ) dengan asumsi bahwa tidak ada katalis yang rontok pada saat kalsinasi dan diasumsikan pula pada saat reduksi semua oksida tereduksi dengan sempurna.

#### 4.4. Uji Aktivitas Katalis Terstruktur *Gauze*

Waktu reaksi dapat mempengaruhi kualitas nanokarbon yang diproduksi. Waktu reaksi 20 menit dapat memberikan hasil nanokarbon dengan kualitas yang lebih baik, yaitu diameter yang paling kecil (Shafa, 2009). Pada percobaan ini dilakukan uji aktivitas selama 20 menit untuk melihat kualitas karbon yang terbentuk pada waktu tersebut.

Katalis terstruktur *gauze* diletakkan pada jarak 12 cm dari bagian depan *furnace* (Yulianti, 2009). Hal ini bertujuan untuk mendapatkan suhu yang tepat 700°C pada waktu reaksi. Berikut adalah posisi *gauze* dalam reaktor yang diletakkan di *furnace*.



Gambar 4.17. Katalis terstruktur *gauze* dalam reaktor

Sebelum dilakukan reaksi dengan menggunakan gas metana, terlebih dahulu dilakukan reduksi dengan mengalirkan gas hidrogen. Hal ini bertujuan untuk mereduksi oksida (NiO, CuO, dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) yang terbentuk saat kalsinasi pada proses pelapisan katalis sehingga didapatkan komponen Ni, Cu, dan Al sesuai dengan yang kita inginkan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana. Proses reduksi dimaksudkan untuk menghilangkan oksida yang terbentuk sehingga ukuran inti aktif katalis menjadi lebih kecil dan diameter nanokarbon yang terbentuk menjadi lebih kecil. Proses reduksi ini dilakukan secara *in-situ* dalam reaktor. Kebutuhan volume gas hidrogen untuk proses reduksi ini adalah 25 liter dihitung dengan stoikiometrik dari oksida maksimal yang dapat diikat oleh partikel Ni selama proses preparasi katalis terstruktur tersebut. Oleh karena itu pada percobaan dialirkan gas hidrogen dengan laju alir 25 L/hr selama 1 jam. Dengan adanya reduksi ini maka oksida akan berikatan dengan hidrogen membentuk air yang terlihat keluar pada keluaran reaktor. Proses reduksi ini diasumsikan sempurna sehingga semua oksida yang terikat pada *wiremesh* dianggap hilang setelah reduksi.

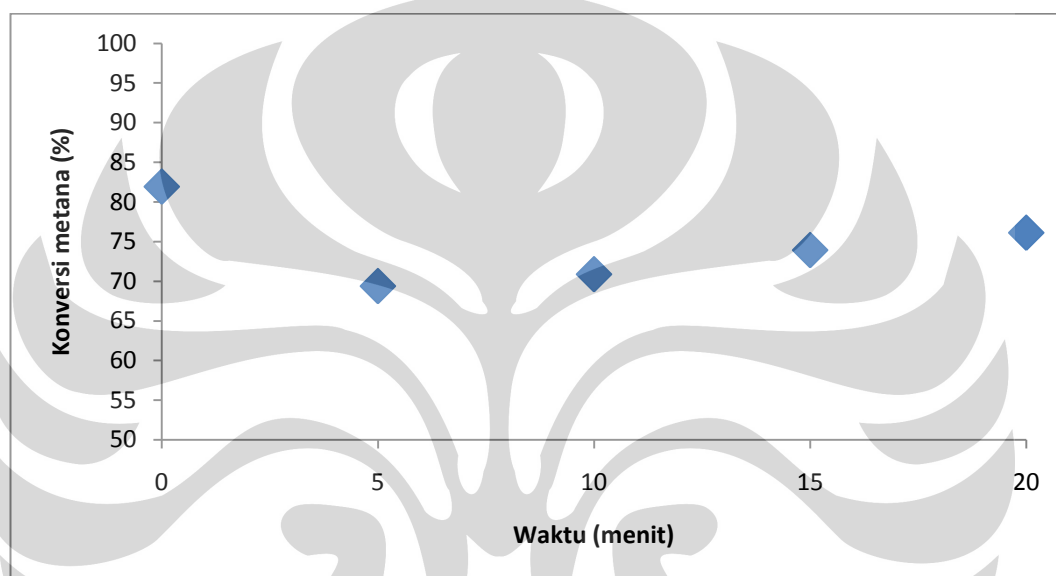
Proses reaksi dekomposisi katalitik metana pada percobaan ini dilakukan pada tekanan atmosferik, suhu 700<sup>0</sup>C, dan laju alir gas metana yang digunakan adalah 6 L/hr. Hal ini tidak sesuai dengan hasil perhitungan *scale-up* yang sebenarnya membutuhkan 140 L/hr gas metana karena *massflow* yang digunakan hanya dapat beroperasi pada laju alir tersebut.

Reaksi dimulai saat temperatur di dalam reaksi (temperatur pada termokopel) telah mencapai 700<sup>0</sup>C yang merupakan suhu reaksi yang digunakan untuk proses reaksi dekomposisi katalitik metana dan dialirkannya gas metana sebagai gas sumber. Hasil keluaran dari reaktor berupa gas dialirkan secara *online* ke GC untuk mengetahui komposisinya dengan data waktu retensi dan *peak area* yang diberikan. Gas-gas yang diharapkan keluar 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. Berdasarkan uji aktivitas yang telah dilakukan, berikut adalah hasilnya ditinjau dari konversi metana, kemurnian hidrogen, dan yield karbon.

#### 4.4.1. Konversi Metana

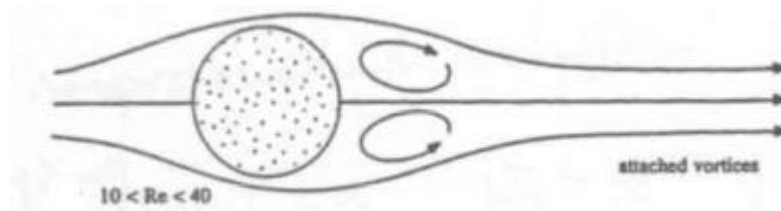
Konversi metana menunjukkan seberapa banyak metana yang terkonversi menjadi produk, baik utama (hidrogen dan karbon) maupun sampingan (karbon monoksida dan karbon dioksida, bila terbentuk). Produk-produk berupa gas dapat dideteksi dari GC. Konversi metana dihitung dari pembagian anatar selisih mol metana masuk dengan mol metana keluar, terhadap mol metana masuk.

Pada pengujian aktivitas katalis selama 20 menit pada suhu  $700^{\circ}\text{C}$  didapatkan hasil sebagai berikut.



Gambar 4.18. Hubungan waktu terhadap konversi metana pada uji aktivitas reaktor katalis terstruktur *gauze*.

Dari grafik di atas dapat dilihat bahwa konversi metana tertinggi yang didapatkan adalah pada menit ke-0, yaitu 82%. Namun demikian, harga tersebut kurang dapat dipercaya karena kemungkinan masih adanya gas hidrogen. Menit ke-0 ini berarti penutupan aliran gas hidrogen dan pembukaan gas metana. Oleh karena jarak antara reaktor dan GC yang jauh maka saat dilakukan analisis GC pada menit ke-0 tersebut masih terdapat hidrogen dalam aliran dan ikut terdeteksi saat analisis GC. Kemudian pada menit berikutnya konversi metana cenderung menurun hingga didapatkan konversi pada menit ke-5 yaitu 69,4% lalu terus naik sampai mencapai 76,1% pada menit ke-20. Pada menit kelima ini dianggap sudah tidak ada hidrogen dari sisa proses reduksi.



Gambar 4.19 . Efek turbulensi pada pola aliran

Laju reaksi dipengaruhi oleh suhu, tekanan, dan konsentrasi. Dengan suhu dan tekanan yang konstan, maka yang mempengaruhi konversi pada percobaan ini adalah konsentrasi. Semakin besar konsentrasi maka semakin cepat laju reaksinya. Dilihat dari Gambar 4.19, dapat dilihat pola aliran pada *gauze* dengan meninjau satu buah *wire*. Aliran gas metana yang masuk awalnya akan menumbuk bagian depan *wire* lalu mengalir mengelilingi *wire* sampai pada sudut tertentu terjadi vorteks pada aliran.

Pada saat menumbuk *wire*, tekanannya tinggi dan kecepatannya rendah. Semakin ke belakang, tekanannya rendah dan kecepatannya tinggi sampai suatu titik maksimum, kecepatannya akan menurun lagi. Vorteks ini terjadi saat tidak ada lagi gradien kecepatan pada aliran sehingga aliran tidak mampu menahan momentum yang datang dari gradien tekanan. Adanya vorteks menyebabkan banyaknya tumbukan dan pencampuran sempurna sehingga laju perpindahan massa tinggi dan menyebabkan tumbuhnya karbon. Awalnya karbon tumbuh di belakang *wire*.

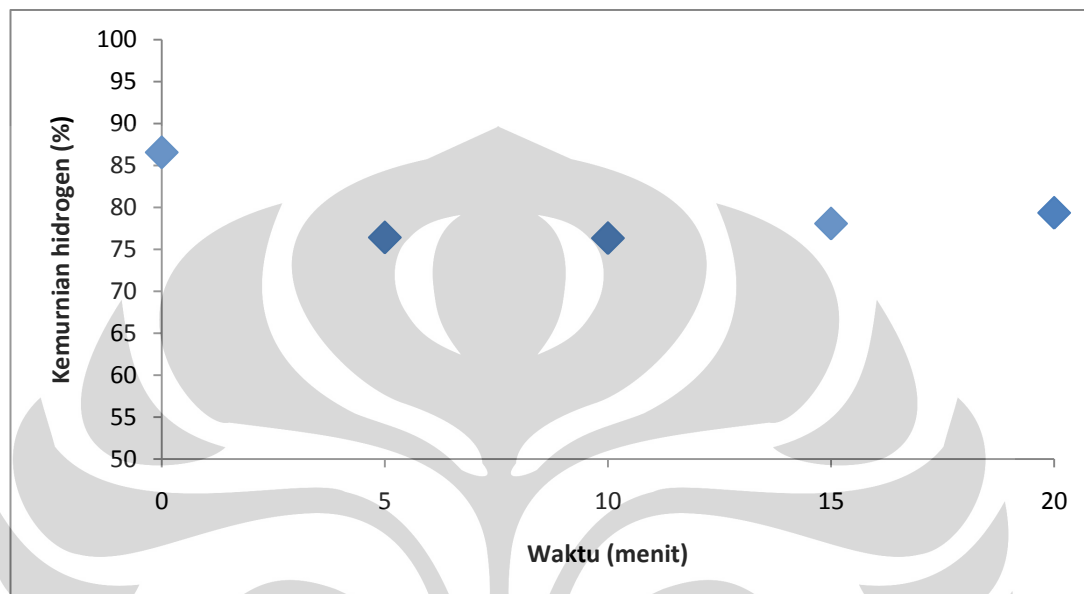
Adanya karbon ini menyebabkan permukaan menjadi kasar sehingga mengganggu lapisan batas dan menyebabkan laju perpindahan massa menjadi tinggi sehingga vorteks semakin cepat terjadi. Dengan semakin banyaknya karbon yang tumbuh di belakang, maka konsentrasi di bagian belakang akan meningkat sehingga akan menggeser sudut terjadinya vorteks menjadi semakin kecil dan karbon dapat tumbuh di depan juga. Semakin lama waktu reaksi maka semakin banyak karbon yang tumbuh yang berarti konversi meningkat.

#### 4.4.2. Kemurnian Hidrogen

Kemurnian hidrogen adalah rasio antara volume gas hidrogen pada keluaran terhadap volume total gas keluaran. Parameter kemurnian hidrogen ini



menunjukkan banyaknya produk utama yaitu gas hidrogen yang dihasilkan dari reaksi dekomposisi katalitik metana dengan katalis terstruktur *gauze* ini dibandingkan dengan metana yang tidak terkonversi dan gas pengotor lainnya, yaitu CO dan CO<sub>2</sub>. Oleh karena itu, nilai kemurnian hidrogen berbanding lurus dengan konversi metana. Berikut adalah kemurnian hidrogen untuk uji aktivitas.



Gambar 4.20. Hubungan waktu terhadap kemurnian hidrogen pada uji aktivitas reaktor katalis terstruktur *gauze*.

Pada percobaan dapat dilihat bahwa kemurnian hidrogen tertinggi terdapat pada menit ke-0 reaksi yaitu 86,5% dan menurun hingga 76,4% pada menit ke-5 lalu naik lagi hingga mencapai 79,3% pada menit ke-20. Tingginya kemurnian hidrogen pada menit ke-0 disebabkan oleh masih adanya hidrogen sisa proses reduksi yang masih terbawa dalam aliran gas. Untuk menit berikutnya sama seperti konversi metana karena semakin besar konversi metana maka semakin besar pula hidrogen yang dihasilkan yang berarti semakin besar kemurnian hidrogen.

#### 4.4.3. Yield Karbon

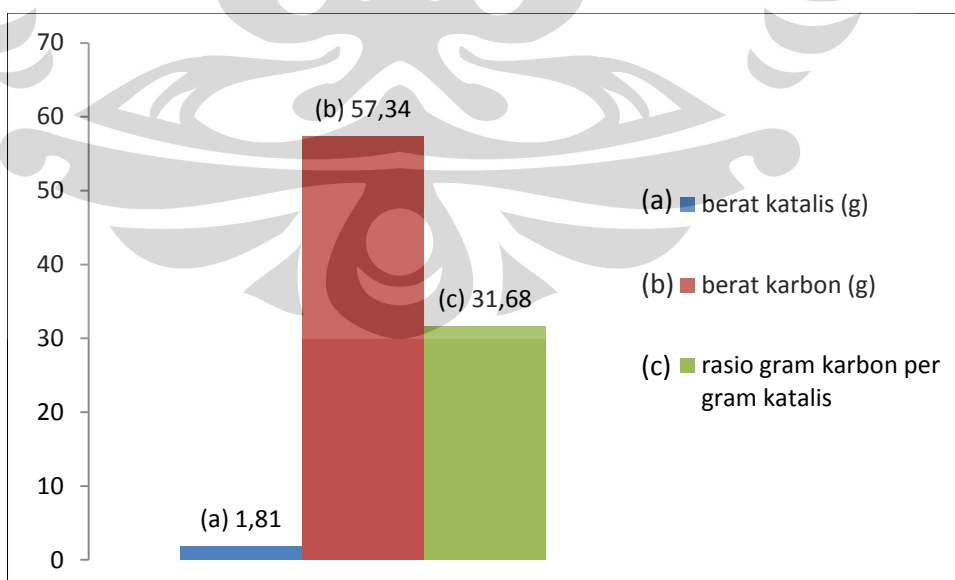
Yield karbon adalah banyaknya karbon yang terbentuk per berat katalis yang terpakai. Dari penelitian, didapatkan bahwa untuk proses reaksi selama 20 menit dengan 1,81 gram katalis didapatkan yield karbon sebanyak 57,34 gram atau 31 gram karbon per gram katalis. Setelah reaksi dihentikan dan hasilnya

diamati, dapat dilihat bahwa belum seluruh permukaan katalis terstruktur *gauze* tertutup karbon, hanya bagian depan yang lebih dekat dengan aliran masukan gas yang tertutup karbon. Hal ini disebabkan oleh aliran gas yang masuk akan menumbuk permukaan *wire* pada bagian depan terlebih dahulu. Pada *gauze*, bagian depan sudah memiliki luas permukaan yang cukup besar sebagai tempat reaksi. Berikut adalah *gauze* hasil uji aktivitas.



Gambar 4.21. *Gauze* setelah uji aktivitas

Yield karbon yang didapatkan pada percobaan ini dapat diperbesar dengan memperpanjang waktu reaksi atau dengan menambah laju alir gas metana sebagai sumber gas untuk reaksi ini. Semakin lama waktu reaksi maka semakin besar konsentrasi produk yang terbentuk karena laju reaksinya yang semakin besar juga. Dengan menambah laju alir gas masukan berarti meningkatkan konsentrasi reaktan yang dapat meningkatkan laju reaksi juga. Berikut adalah yield karbon yang diperoleh dari percobaan ini.



Gambar 4.22. Yield karbon setelah reaksi 20 menit

#### 4.5. Uji Stabilitas Katalis Terstruktur Gauze

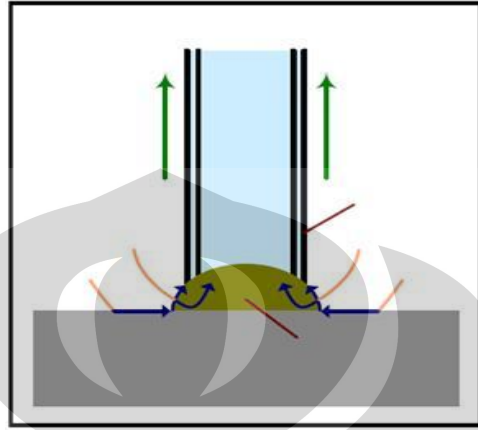
Percobaan yang dilakukan adalah uji stabilitas katalis. Tujuan dari percobaan ini adalah untuk mengetahui berapa lama katalis dapat aktif bekerja dalam proses dekomposisi katalitik metana dan waktu yang diperlukan untuk mencapai kestabilan konversi metana. Percobaan yang dilakukan sama dengan uji aktivitas, yang berbeda hanyalah lamanya reaksi,. Untuk uji ini, reaksi dilakukan selama 17 jam. Pada percobaan ini juga dilakukan reduksi dengan menggunakan hidrogen dengan laju alir 25 L/hr selama 1 jam. Percobaan dilakukan pada tekanan atmosferik, suhu reaksi 700<sup>0</sup>C dan laju alir masuk rata-rata metana adalah 20 L/hr. Hal ini tidak sesuai dengan hasil perhitungan *scale-up* yang sebenarnya membutuhkan 140 L/hr gas metana karena *massflow* yang tersedia hanya dapat beroperasi maksimal pada laju alir tersebut. Pengambilan data dilakukan setiap 5 menit selama 15 menit pertama dan setiap 15 menit sampai 17 jam.

Reaksi dimulai saat temperatur di dalam reaktor (temperatur pada termokopel) telah mencapai 700<sup>0</sup>C yang merupakan suhu reaksi yang digunakan untuk proses reaksi dekomposisi katalitik metana. Hasil keluaran dari reaktor berupa gas dialirkan secara *online* ke GC untuk mengetahui komposisinya dengan data waktu retensi dan *peak area* yang diberikan. Gas-gas yang diharapkan keluar 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.

##### 4.5.1. Konversi Metana

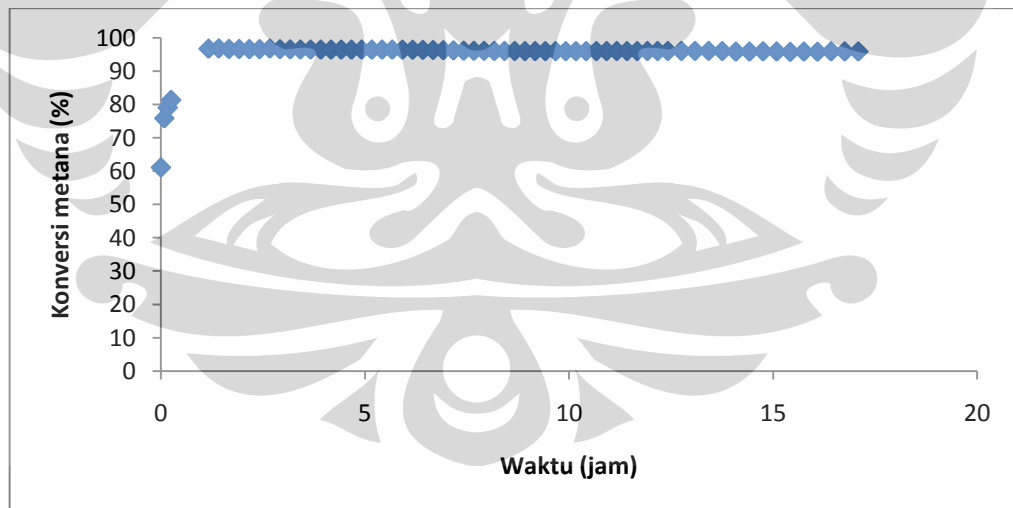
Berdasarkan percobaan yang telah dilakukan selama 17 jam, didapatkan bahwa pada menit ke-0 diperoleh konversi 61%. Hal ini disebabkan oleh masih adanya gas hidrogen sisa reduksi yang masih terbawa dalam aliran gas sehingga data ini kurang dapat dipercaya. Pada menit ke-5, konversinya menjadi 75,84% dan naik terus hingga pada menit ke- 70 konversinya menjadi 96,7% dan pada menit ke-505 konversinya menjadi 95,99% hingga pada akhirnya konversi yang dicapai setelah reaksi 17 jam adalah 95,86%. Adanya penurunan konversi, walaupun tidak signifikan disebabkan oleh adanya karbon yang terdeposit pada permukaan *wire* sehingga menutupi katalis sehingga mengurangi luas permukaan katalis. Akan tetapi, adanya karbon tidak menghalangi masuknya metana ke

dalam katalis, sehingga reaksi tetap dapat berjalan dan konversi tetap stabil. Konversi yang stabil ini disebabkan oleh walaupun katalis telah terdeposisi oleh karbon, tapi reaktan (metana) masih dapat masuk ke dalam inti aktif sehingga reaksi masih dapat berlangsung. Hal ini ditunjukkan pada gambar berikut.



Gambar 4.23. Aliran metana ke dalam inti aktif katalis

Konversi maksimum yang tercapai adalah pada menit ke-85, yaitu 96,77%. Hal ini berarti katalis terstruktur *gauze* masih aktif selama 17 jam dan konversi metana yang dihasilkan pada waktu tersebut cenderung stabil sehingga masih bisa digunakan lebih dari 17 jam. Berikut adalah hasilnya.

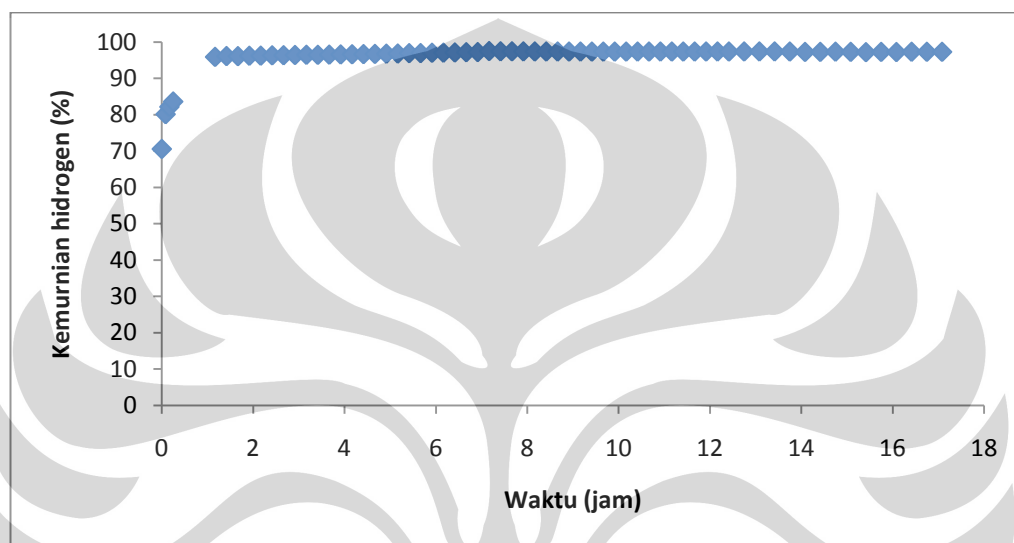


Gambar 4.24. Hubungan waktu terhadap konversi metana pada uji *lifetime* katalis terstruktur *gauze*

#### 4.5.2. Kemurnian Hidrogen

Kemurnian hidrogen yang didapatkan pada percobaan ini juga sebanding dengan konversi metana. Kemurnian hidrogen pada menit ke-0 adalah 70,5%

kemudian naik hingga 95,86% pada menit ke-70 lalu pada menit ke-370 kemurniannya naik menjadi 97,01%. Hal ini disebabkan oleh makin lama kandungan pengotor, yaitu CO dan CO<sub>2</sub> makin kecil dan pada menit ke-430, kandungan pengotor tersebut sudah tidak ada sehingga meningkatkan kemurnian hidrogen. Kemurnian hidrogen mencapai nilai maksimalnya pada menit ke-430 dengan kemurnian 97,46%. Kemurnian hidrogen cenderung stabil sampai 17 jam dengan kemurnian 97,25%. Berikut adalah hasilnya.



Gambar 4.25. Hubungan waktu terhadap kemurnian hidrogen pada uji *lifetime* katalis terstruktur *gauze*.

#### 4.5.3. Yield Karbon

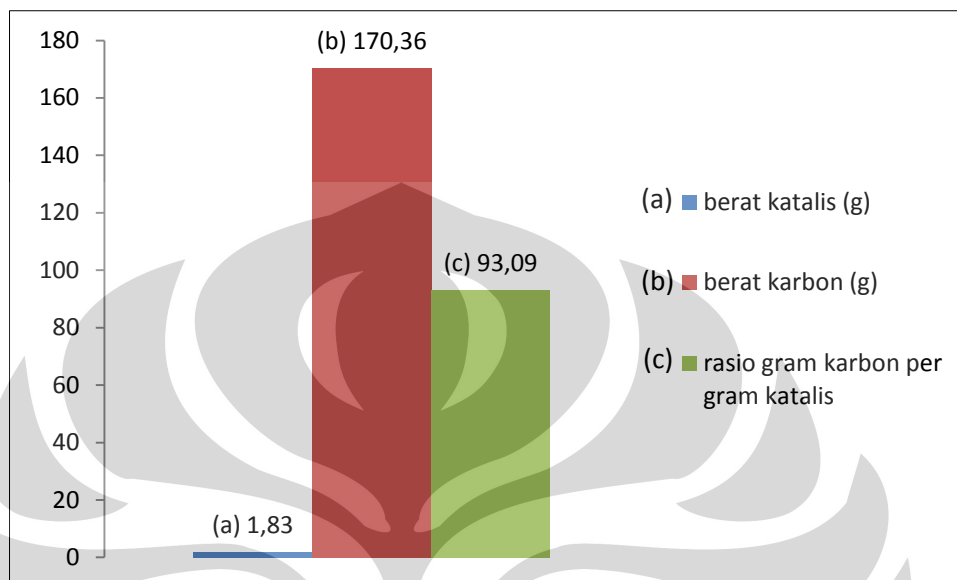
Yield karbon yang didapatkan dengan loading katalis sebanyak 1,83 gram adalah 170,36 gram karbon. Berikut adalah *gauze* yang telah selesai uji stabilitas.



Gambar 4.26. *Gauze* setelah uji stabilitas katalis

Rasio berat produk per berat katalis  $\left(\frac{w_C}{w_{cat}}\right)$  adalah 93,09 g C/ g cat. Rasio ini masih cukup kecil dan kurang efektif untuk produksi nanokarbon dalam jumlah besar. Hal ini dapat ditingkatkan dengan menambah laju alir gas metana

yang merupakan sumber gas pada reaksi dekomposisi katalitik metana ini. Laju alir metana yang seharusnya adalah 140 L/h untuk skala pilot ini, akan tetapi yang digunakan pada percobaan ini hanya 20 L/h. Berikut adalah yield karbon yang dihasilkan.



Gambar 4.27. Yield karbon setelah reaksi 17 jam

#### 4.6. Kapasitas Produksi Reaktor Katalis Terstruktur Gauze Skala Pilot

Pada awal perancangan, target produk nanokarbon adalah 1 kg/hari. Dari satu kali hasil percobaan uji aktivitas selama 20 menit, diperoleh karbon sebanyak 57,34 gram. Berikutnya kita harus menghitung waktu yang dibutuhkan untuk satu kali produksi ini, yaitu:

- Proses pemanasan reaktor = 1 jam
- Proses *loading* katalis dan pemasangan reaktor = 5 menit
- Proses reduksi = 1 jam
- Proses reaksi dekomposisi katalitik metana = 20 menit
- Proses pendinginan = 1 jam
- Proses *unloading* katalis = 5 menit

Sehingga total waktu yang dibutuhkan untuk satu kali produksi adalah tiga setengah jam. Bila diasumsikan reaksi berlangsung secara kontinu selama 24 jam maka jumlah karbon yang dapat dihasilkan dalam satu hari adalah 393,19 gram karbon. Jumlah ini masih kurang dari target awal, yaitu 1 kg/hari. Hal ini

disebabkan oleh kecilnya laju alir metana, yaitu 6 L/h, padahal dari perhitungan *scale-up* gas metana yang dibutuhkan sebagai reaktan seharusnya 140 L/h.

Ditinjau dari segi konversi, konversi tertinggi yang diperoleh oleh Yulianti, 2008 adalah 94,87%. Pada reaktor skala pilot ini, diperoleh konversi metana tertinggi 96,77%. *Scale-up* bertujuan untuk memperoleh konversi yang sama. Dilihat dari konversi metana yang hanya berbeda 1,9% maka tujuan *scale-up* tersebut telah terpenuhi.



## BAB V KESIMPULAN

### 5.1. KESIMPULAN

Dari penelitian ini, dapat disimpulkan beberapa hal berikut:

1. Dari *scale-up* reaktor dengan prinsip *geometric similarity*, diperoleh:

- Laju alir metana = 140 L/h
- Diameter reaktor = 8 cm
- Panjang reaktor = 32 cm
- Diameter wire = 0,64 mm
- Jumlah mesh/inch = 10
- Luas permukaan katalis = 2938,982 cm<sup>2</sup>
- Panjang *wiremesh* = 3565 cm

2. Pelapisan katalis Ni-Cu-Al pada kawat *stainless steel* dengan metode *dip-coating* menghasilkan kapasitas loading yang berbeda-beda, yakni 0,000623 g/cm<sup>2</sup> dan 0,000616 g/cm<sup>2</sup>.

3. Pada reaktor katalis terstruktur ini, tidak terjadi *pressure drop* yang dapat mengakibatkan berakhirnya reaksi. Reaksi akan berakhir bila katalis terdeaktivasi akibat tertutupnya permukaan katalis oleh deposit karbon. *Lifetime* katalis yang diuji paling lama adalah 17 jam dan masih dapat berlanjut.

4. Untuk uji stabilitas katalis selama 17 jam pada suhu 700°C dengan laju alir metana 20 L/h, konversi metana tertinggi adalah 96,77% dan kemurnian hidrogen tertinggi adalah 97,46%. Produk karbon yang dihasilkan memiliki yield 93,09 gr karbon / gr katalis.

5. Untuk uji aktivitas katalis selama 20 menit pada suhu 700°C dengan laju alir metana 6 L/h, konversi metana tertinggi adalah 76,1% dan kemurnian hidrogen tertinggi adalah 79,3%. Produk karbon yang dihasilkan memiliki yield 31 gr karbon / gr katalis.

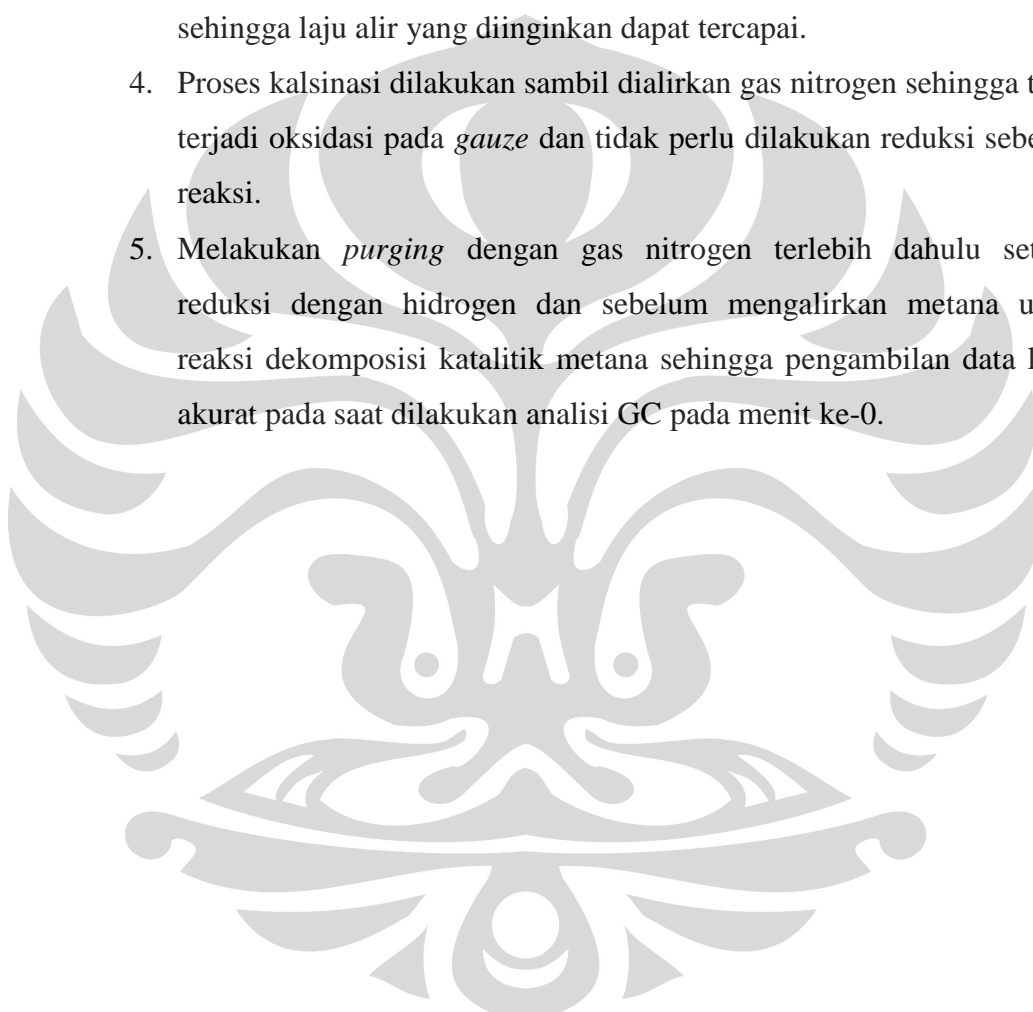
6. Hasil *scale-up* reaktor katalis terstruktur *gauze* skala pilot ini memiliki kapasitas produksi 393,19 gram karbon/hari.



## 5.2. SARAN

Untuk penelitian selanjutnya, peneliti menyarankan hal berikut:

1. Menggunakan *wire* yang terbuat dari *stainlees steel* 316 yang kandungan campuran logamnya lebih sedikit dan ada sertifikasinya.
2. Menggunakan tubing dengan ukuran yang sama sepanjang aliran sehingga tidak terdapat reducer yang dapat mempengaruhi alirannya.
3. Mengurangi jarak antara keluaran reaktor dan *Gas Chromatography* sehingga laju alir yang diinginkan dapat tercapai.
4. Proses kalsinasi dilakukan sambil dialirkan gas nitrogen sehingga tidak terjadi oksidasi pada *gauze* dan tidak perlu dilakukan reduksi sebelum reaksi.
5. Melakukan *purging* dengan gas nitrogen terlebih dahulu setelah reduksi dengan hidrogen dan sebelum mengalirkan metana untuk reaksi dekomposisi katalitik metana sehingga pengambilan data lebih akurat pada saat dilakukan analisis GC pada menit ke-0.



**DAFTAR PUSTAKA**

Anonim. Bilangan Reynold. (1999) [diakses pada 20 Juni 2009]. Tersedia di:  
[http://id.wikipedia.org/wiki/Bilangan\\_Reynolds](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/nanoteknologi.dbd>.

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

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.

Colomer, J. (2000). Large-scale synthesis of single-wall carbon nanotubes by catalytic chemical vapor deposition\_CCVD/method. Chemical Physics Letters 317\_2000.83-89.

Daenan M, de Fouw RD, Hamers B, Janssen PGA, Schouteden K, Veld MAJ. (2003). Wondrous World of Carbon Nanotubes. Eindhoven University of Technology.

Ermakova, M. A. et al. (1999). New Nickel Catalyst for the Formation of Filamentous Carbon in the Reaction of Methane Decomposition. Journal of Catalysis, 187, 77 – 84.

- Ermakova, M. A. (2000). Effective Catalysts for Direct of Methane to Produce Hydrogen and Filamentous Carbon. *Applied Catalysis A: General* 201, 61 – 71.
- Ermakova, M. A. and D. Yu. Ermakov. (2002). Ni/SiO<sub>2</sub> and Fe/SiO<sub>2</sub> 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). Diferrences between carbon nanofibers produced using Fe and Ni catalysts in a floating catalyst reactor. *Carbon* 2006;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* 2006; 97:109-115.
- 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 Cabon Nanotube Growth. *Journal ofPhysics: Conference Series* 152 (2009) 011209.

- Kolodziej, Andrzej et al. (2007). Structured catalytic reactor for VOC combustion. Polish Journal of Chemical Technology, 9, 1, 10-14, 2007, 10.2478/v10026-007-0004-0.
- Kvande I, Chen D, Yu Z, Ronning M, Holmen A. (2008). Optimization and scale-up of CNF production based on intrinsic kinetic data obtained from TEOM. Journal of Catalysis 256, 204–214.
- Kvande, I et al. (2006). Towards Large Scale Production of CNF for Catalytic Applications. Chemistry of Sustainable Development 14 (2006) 583-589.
- 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.
- Michio, Inagaki, Katsumi Kaneko, Takashi Nishizawa. (2004). Nanocarbons – Recent Research in Japan. Carbon, 42, 1401-1417.
- 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 promotor pada kuantitas dan kualitas karbon naotube pada reaksi dekomposisi katalitik metana, Laporan Riset-Osaka Gas.
- Muradov N (2001). Thermocatalytic CO<sub>2</sub>-free Production of Hydrogen from Hydrocarbon Fuels, Proceedings of the DOE Hydrogen Program Review.
- 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.

Nauman, Bruce. (2001). *Chemical Reactor Design, Optimization, and Scaleup*. New York: McGraw-Hill.

Purwanto, W.W., Yuswan M., Wong T.T. (1997). *Simulasi Reaktor Uap Air/Metana*. Prosiding Seminar Teknik Kimia Soehadi Rekswardoyo, ITB. Bandung.

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, 7<sup>th</sup> Asean Science and Technology Weeks, Jakarta.

Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M. (2001). *Nanotubes*. *Chemphyschem* 2001;2:78-105.

Saputra, Eky. (2005). *Studi Pengaruh Diameter Partikel Nikel terhadap Kinerja Katalis Ni-Cu/Al pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana*. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

**Universitas Indonesia**

Shafa, Shantya. (2009). Aplikasi Pengadukan Ultrasonik dan Pemanasan Microwave untuk Memurnikan Karbon Nanotube yang Disintesis dengan Metode Dekomposisi Katalitik Metana. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

Smet, Carlo R.H. de, (2000). Partial oxidation of methane to synthesis gas : reaction kinetics and reactor modelling. Technische Universiteit Eindhoven, Terneuzen, The Netherlands.

Wang Y., F. Wei, G. Luo, H. Yu, G. Gu (2002). The large scale production of carbon nanotubes in a nano agglomerate fluidized bed reactor, Chemical Physics Letters, 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.

Wyszynski and Jamal (1994). Int.J.Hydrogen Energy, 19, 557.

Yulianti, Dwi. (2009). Pengaruh *space time*, temperatur, dan rasio umpan terhadap kinerja reaktor *gauze* untuk produksi hidrogen dan nanokarbon melalui reaksi dekomposisi metana. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

Yulianti, Ira (2008). Perancangan Reaktor Katalis Terstruktur untuk Produksi Karbon Nanotube dan Hidrogen melalui Proses Dekomposisi Katalitik Metana. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

Zhang D, Shi L, Fang J, Dai K, Li X. (2006). Preparation and desalination performance of multiwall carbon nanotubes. *Materials Chemistry and Physics* 2006; 97:415-419.



**Universitas Indonesia**

## LAMPIRAN A. PENURUNAN RUMUS TABEL 2.3

### A.1 Scale-up Diameter Reaktor

$$s = \frac{V_2}{V_1} = \frac{\frac{\pi}{4} D_2^2 L_2}{\frac{\pi}{4} D_1^2 L_1}$$

Apabila kita substitusikan persamaan *geometric similarity*,

$$\frac{L_2}{L_1} = \frac{D_2}{D_1}$$

$$s = \frac{V_2}{V_1} = \frac{\frac{\pi}{4} D_2^2 L_2}{\frac{\pi}{4} D_1^2 L_1} = \left( \frac{D_2}{D_1} \right)^3$$

Sehingga didapatkan:

$$\frac{D_2}{D_1} = S^{1/3}$$

### A.2 Scale-up Bilangan Reynold

Dengan menggunakan persamaan

$$Q = A \cdot v$$

$$v = \frac{Q}{A}$$

$$A = \frac{\pi}{4} D^2$$

Maka didapatkan *scale-up* untuk Re adalah:

$$\frac{\text{Re}_2}{\text{Re}_1} = \frac{\frac{\rho v_2 D_2}{\mu}}{\frac{\rho v_1 D_1}{\mu}} = \frac{v_2 D_2}{v_1 D_1} = \frac{\frac{Q_2}{A_2} \cdot D_2}{\frac{Q_1}{A_1} \cdot D_1} = \frac{Q_2}{Q_1} \cdot \frac{\frac{\pi}{4} D_1^2}{\frac{\pi}{4} D_2^2} \cdot \frac{D_2}{D_1} = \frac{Q_2}{Q_1} \frac{D_1}{D_2} = S \cdot S^{-1/3} = S^{2/3}$$

### A.3 Scale-up Koefisien Perpindahan Panas

Korelasi yang umum digunakan untuk koefisien perpindahan panas di dalam reaktor untuk aliran laminar dan nilai  $Gz < 75$  adalah:



$$\frac{h.D}{\lambda} = 1.86Gz^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14}$$

Dengan:  $Pr = \frac{Cp\mu}{\lambda}$ ,  $Re = \frac{\rho v D}{\mu}$ ,  $Gz = \frac{Re.Pr.D}{L}$

Penurunan rumus *scale-up factor* untuk h adalah:

$$\frac{h_2.D_2}{\lambda} = \frac{1.86Gz_2^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14}}{1.86Gz_1^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14}}$$

$$\frac{h_2.D_2}{\lambda} = \frac{1.86 \left( \frac{Re_2 Pr D_2}{L_2} \right)^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14}}{1.86 \left( \frac{Re_1 Pr D_1}{L_1} \right)^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14}}$$

$$\frac{h_2}{h_1} = \frac{1.86(Pr)^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14} \cdot \lambda \cdot \left( \frac{Re_2}{Re_1} \right)^{1/3} \cdot \left( \frac{D_2}{D_1} \right)^{1/3} \cdot \left( \frac{L_1}{L_2} \right)^{1/3} \cdot \frac{D_1}{D_2}}{1.86(Pr)^{1/3} \left( \frac{\mu_{bulk}}{\mu_{wall}} \right)^{0.14} \cdot \lambda}$$

$$\frac{h_2}{h_1} = (S^{2/3})^{1/3} \cdot (S^{1/3})^{1/3} \cdot (S^{-1/3})^{1/3} \cdot S^{-1/3}$$

$$\frac{h_2}{h_1} = S^{-1/9}$$

#### A.4 *Scale-up* $\Delta P$

Untuk aliran laminar, berlaku Hukum Poiseuille:

$$\Delta P = \frac{8\mu v L}{R^2}$$

Sehingga,

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{\frac{8\mu v_2 L_2}{R_2^2}}{\frac{8\mu v_1 L_1}{R_1^2}}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{v_2 L_2}{\frac{R_2^2}{R_1^2}} = \frac{v_2 L_2}{R_1^2}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{\frac{Q_2}{A_2} L_2 R_1^2}{\frac{Q_1}{A_1} L_1 R_2^2}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{\frac{Q_2}{\pi R_2^2} L_2 R_1^2}{\frac{Q_1}{\pi R_1^2} L_1 R_2^2}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{Q_2 L_2 R_1^4}{Q_1 L_1 R_2^4}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = S \cdot S^{1/3} \cdot S^{-4/3}$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = S^0$$

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = 1$$

#### A.5 *Scale-up* $A_{\text{ext}}$

Untuk reaktor tubular,  $A_{\text{ext}}$  merupakan luas selimut reaktor, yaitu:

$$A_{\text{ext}} = \pi D L$$

Sehingga perbandingannya menjadi:

$$\frac{A_{\text{ext},2}}{A_{\text{ext},1}} = \frac{\pi D_2 L_2}{\pi D_1 L_1} = S^{1/3} \cdot S^{1/3} = S^{2/3}$$

## LAMPIRAN B. PERHITUNGAN SCALE-UP REAKTOR

### B.1 Data Reaktor Skala Laboratorium (Yulianti, 2008)

Dari data reaktor skala laboratorium, diperoleh data:

Diameter reaktor	→ $D_1 = 4,26 \text{ cm}$
Panjang reaktor	→ $L_1 = 17 \text{ cm}$
Laju alir metana	→ $Q_1 = 21 \text{ L/h}$
Diameter <i>wire</i>	→ $d_{w1} = 0,33 \text{ mm}$
<i>Separating gap</i> (jarak antara 2 <i>wire sheet</i> )	= 1 mm
<i>Meshes/inch</i>	= 16
Kapasitas produksi	= 150 gr/day

### B.2 Menghitung *Scale-up* Rasio

Kita akan melakukan *scale-up* reaktor skala *laboratorium* (1) menjadi skala pilot (2) dengan kapasitas produksi 1000 gr/day. Kita dapat menghitung *scale-up* rasio, yaitu:

$$S = \frac{\text{kapasitas produksi reaktor skala pilot}}{\text{kapasitas produksi reaktor skala lab}}$$

$$S = \frac{1000 \text{ gr/day}}{150 \text{ gr/day}} = 6,67$$

### B.3 Menghitung Laju Alir Metana

Laju alir metana untuk reaktor skala pilot ( $Q_2$ ) adalah:

$$\frac{Q_2}{Q_1} = S$$

$$Q_2 = S \times Q_1$$

$$Q_2 = S \times 21 \text{ L/h} = 140 \text{ L/h}$$

### B.4 Menghitung Diameter dan Panjang Reaktor

Menghitung diameter dan panjang efektif reaktor skala pilot ( $L_2$  dan  $D_2$ ) dengan prinsip *geometric similarity* [Nauman, 2001]:

$$\frac{D_2}{D_1} = S^{1/3}$$

$$D_2 = D_1 \times S^{1/3} = 4,26 \text{ cm} \times 6,67^{1/3} = 8,019 \text{ cm}$$

$$\frac{L_2}{L_1} = S^{1/3}$$

$$L_2 = L_1 \times S^{1/3} = 17 \text{ cm} \times 6,67^{1/3} = 32 \text{ cm}$$

Jadi, diameter dan panjang reaktor skala pilot adalah 8,019 cm dan 32 cm.

### B.5 Menghitung diameter *wire*

Selanjutnya, kita akan menghitung diameter *wire* reaktor skala pilot ( $d_{w2}$ ) dari perbandingan nilai Reynold. Dari Nauman, 2001, dinyatakan bahwa untuk *geometric similarity* berlaku  $Re_2/Re_1 = S^{2/3}$ .

Perbandingan bilangan Reynold:

$$\frac{Re_2}{Re_1} = \frac{\frac{\rho v_2 d_{w2}}{\mu}}{\frac{\rho v_1 d_{w1}}{\mu}}$$

Dimana:

- $\rho$  = densitas massa
- $z$  = jarak antara dua *wire*
- $d_{w1}$  = diameter *wire* reaktor 1 (skala *lab*) = 1 mm
- $d_{w2}$  = diameter *wire* reaktor 2 (skala pilot)
- $v$  = kecepatan superficial fluida (metana) =  $Q/A$
- $Q$  = laju alir volumetrik metana
- $A$  = luas spesifik ( $=1/4 \pi D^2$ )
- $D$  = diameter efektif reaktor (katalis)
- $\mu$  = viskositas

Oleh karena sifat fisik fluida pada reaktor 1 dan 2 diasumsikan sama, maka:

$$\frac{Re_2}{Re_1} = \frac{\frac{\rho v_2 z_2}{\mu}}{\frac{\rho v_1 z_1}{\mu}}$$

$$\frac{Re_2}{Re_1} = \left( \frac{\frac{Q_2}{\frac{1}{4}\pi D_2^2}}{\frac{Q_1}{\frac{1}{4}\pi D_1^2}} \right) \left( \frac{z_2}{z_1} \right)$$

$$\frac{Re_2}{Re_1} = \frac{Q_2}{Q_1} \cdot \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^2 \left(\frac{z_2}{z_1}\right)$$

$$S^{2/3} = S \cdot (S^{-1/3})^2 \left(\frac{z_2}{1 \text{ mm}}\right)$$

$$S^{1/3} = \frac{z_2}{1 \text{ mm}}$$

$$6,67^{1/3} = \frac{z_2}{1 \text{ mm}}$$

$$z_2 = 1,88 \text{ mm}$$

Untuk menyesuaikan dengan *wiremesh* yang dijual, maka digunakan *wiremesh* dengan spesifikasi sbb:

$$z_2 = 1,89 \text{ mm}$$

$$d_w = 0,65 \text{ mm}$$

$$\text{mesh/inch} = 10 \times 10$$

#### B.6 Menghitung luas katalis 2

$$A_{\text{ext}2}/A_{\text{ext}1} = S^{2/3}$$

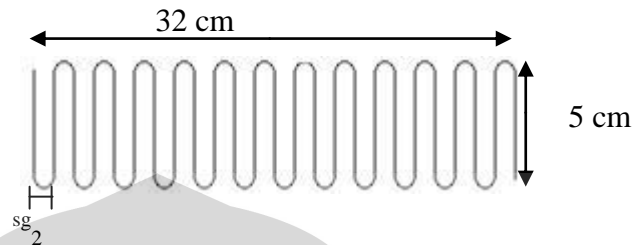
$$\frac{A_2}{A_1} = S^{2/3}$$

$$\frac{A_2}{829,43 \text{ cm}^2} = (6,67)^{2/3}$$

$$A_2 = 2938,982 \text{ cm}^2$$

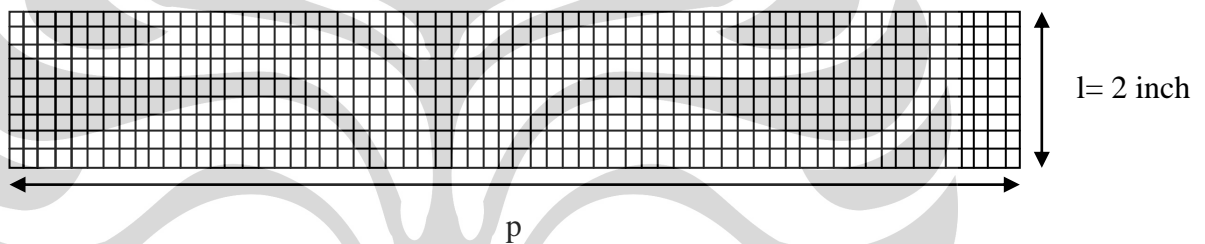
**B.7 Menghitung *wire sheet* ( $n_2$ ), *separating gap*, dan panjang *wire* yang diperlukan untuk reaktor 2**

Bila *separating gap* reaktor 2 =  $sg_2$ , maka ukuran katalis terstrukturnya menjadi:



dengan:  $sg_2 \times (n_2 - 1) = 320 \text{ mm}$  sehingga  $sg_2 = \frac{320 \text{ mm}}{n_2 - 1}$

Bila katalis tersebut dibentangkan, maka akan menjadi:



Selanjutnya kita akan menghitung *meshes/inch* untuk reaktor 2, yaitu:

Dengan jumlah *meshes/inch* = 10, maka kita dapat menghitung jumlah *meshes*:

$$\begin{aligned} p &= p \text{ mm} = p/25,4 \text{ inch} \\ \rightarrow \text{meshes} &= (p/25,4) \text{ inch} \times 10 \text{ meshes/inch} \\ &= 0,394p \text{ meshes} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} l &= 2 \text{ inch} = 5,08 \text{ cm} \\ \rightarrow \text{meshes} &= 2 \text{ inch} \times 10 \text{ meshes/inch} = 20 \text{ meshes} \end{aligned}$$

A = luas permukaan *wire*

$$293898,2 = 21 (2\pi(0,65/2)^2 + \pi \cdot 0,65 \cdot p) + (0,394p + 1)(2\pi(0,65/2)^2 + \pi \cdot 0,65 \cdot 5,08)$$

$$293898,2 = 13,937 + 42,883 p + 41,133p + 104,399$$

$$293779,864 = 84,016 p$$

$$p = 3496,7 \approx 3497$$

Jadi, panjang *wire mesh* = 3497 mm.

Selanjutnya, kita dapat menghitung  $n_2$  dan  $sg_2$ , yaitu:

$$p = (n_2 \times l) + (sg_2 \times (n_2 - 1))$$

$$3497 \text{ mm} = (n_2 \times 50,8 \text{ mm}) + \left( \frac{320 \text{ mm}}{n_2 - 1} \times (n_2 - 1) \right)$$

$$3497 \text{ mm} = 50,8 n_2 \text{ mm} + 320 \text{ mm}$$

$$n_2 = 62,54 \approx 63$$

sehingga,

$$sg_2 = \frac{320 \text{ mm}}{n_2 - 1}$$

$$= 5,161 \text{ mm}$$

Jadi, jumlah *wire sheet* reaktor 2 = 63 dengan *separating gap* = 5,161 mm.

### B.8 Menghitung Total Katalis yang Dibutuhkan

Dengan asumsi bahwa loading katalis rata-rata sama dengan Yulianti, 2008, maka kita dapat menghitung katalis yang dibutuhkan, yaitu:

$$\begin{aligned} \text{Total katalis yang dibutuhkan} &= A_2 \times \text{loading katalis} \\ &= 2938 \text{ cm}^2 \times 0,001099 \text{ gr katalis/cm}^2 \\ &= 3,23 \text{ gr katalis} \end{aligned}$$

### LAMPIRAN C. PERHITUNGAN KEBUTUHAN PREKURSOR KATALIS

Perbandingan mol Ni: Cu : Al = 2 : 1 : 1 (target)

Basis : Katalis = 3,23 gram

$$\text{Mr Ni} = 58.69$$

$$\text{Mr Cu} = 63.546$$

$$\text{Mr Al} = 26,9815$$

$$\text{Mr campuran} = 0.5 \times 58.69 + 0.25 \times 63.546 + 0.25 \times 26,9815 = 51,977$$

$$n \text{ campuran} = 3,23 / 51,977 = 0,062$$

Perbandingan mol Ni : Cu : Al = 0.031 : 0.0155 : 0.0155

$$\text{Mr Ni(NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O} = 290.81$$

$$\text{Mr Cu(NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O} = 241,6$$

$$\text{Mr Al(NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} = 375,13$$

Perbandingan katalis yang dibutuhkan:

$= \text{Ni(NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	$: \text{Cu(NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$	$: \text{Al(NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	
$= 0,031$	$: 0,0155$	$: 0,0155$	(dalam mol)
$= 9,02$	$: 3,74$	$: 5,81$	(dalam gram)

$$\text{Jumlah mol nitrat} = 0,031 + 0,0155 + 0,0155 = 0,078 \text{ mol}$$

Untuk mendapatkan larutan 2 M maka:

$$V = n/M = 0,078/2 = 0,039 \text{ L} = 39 \text{ mL}$$

Jumlah larutan yang diinginkan disesuaikan dengan ukuran *gauze* dan wadah yang ada adalah = 1584 mL maka,  $1584 \text{ mL} / 39 \text{ mL} = 40,62 \approx 41$

Untuk pembuatan larutan ini, jumlah mol dikalikan dengan 42, sehingga:

$$n = 0,078 \text{ mol} \times 42 = 3,276 \text{ mol}$$

sehingga volume larutannya menjadi:

$$V = n/M = 3,276 \text{ mol} / 2 \text{ M} = 1638 \text{ mL}$$

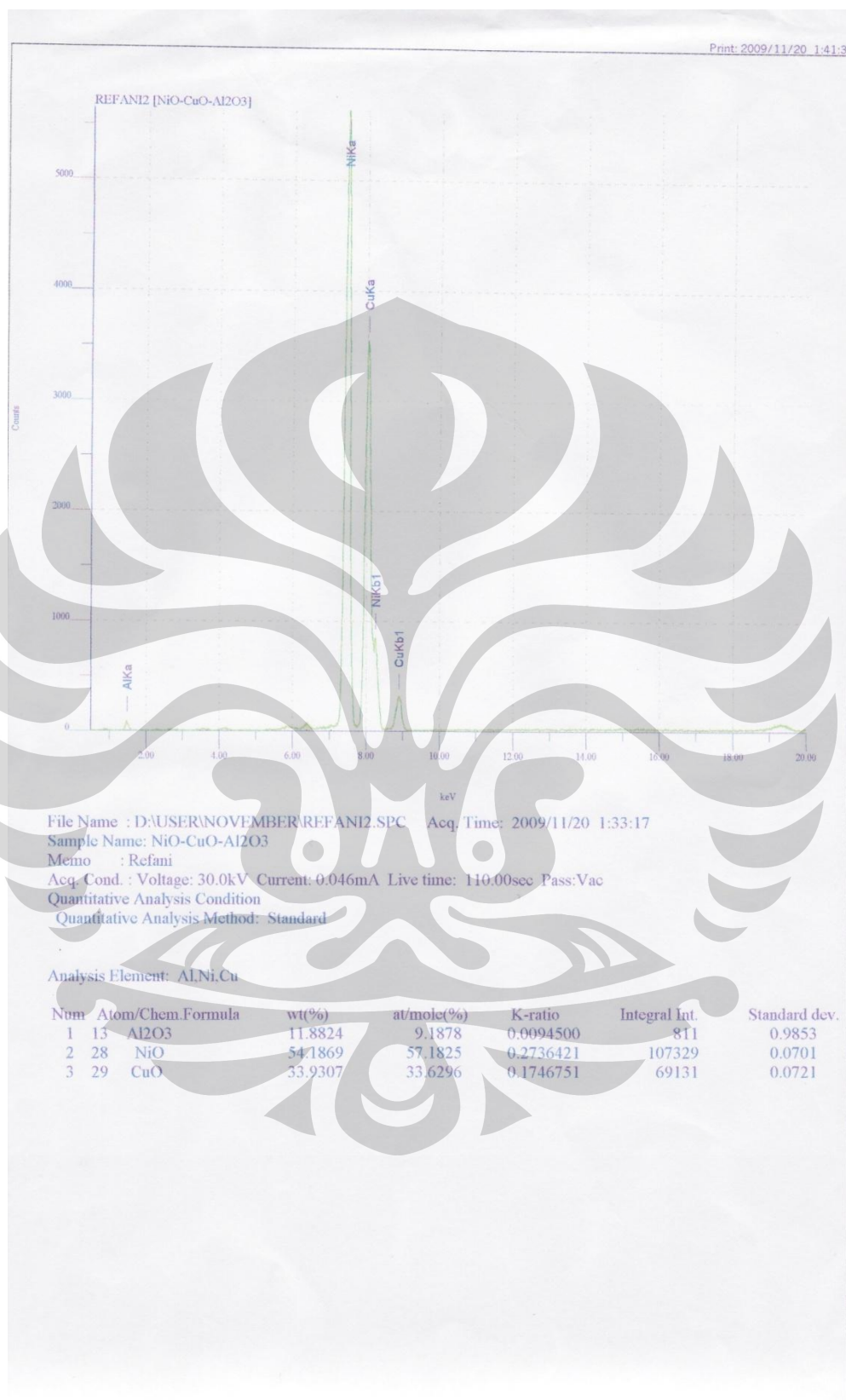
Jumlah asam sitrat yang dibutuhkan (mol nitrat: mol asam sitrat = 1:1), yaitu:

$$= 3,276 \text{ mol} \times 210,14 \text{ (Mr asam sitrat)}$$

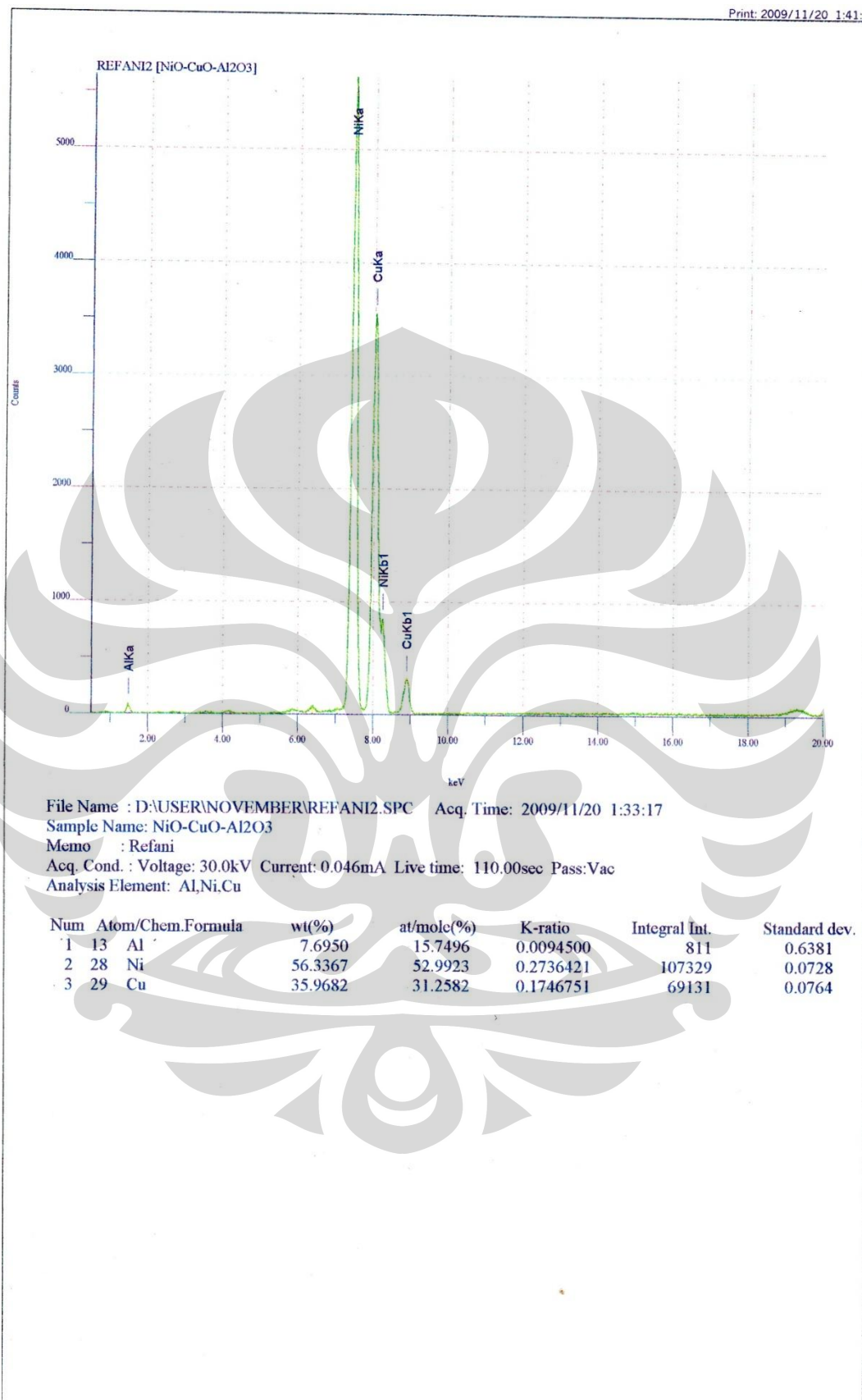
$$= 688,419 \text{ gram}$$



### LAMPIRAN D. HASIL KARAKTERISASI XRF



Print: 2009/11/20 1:41:6

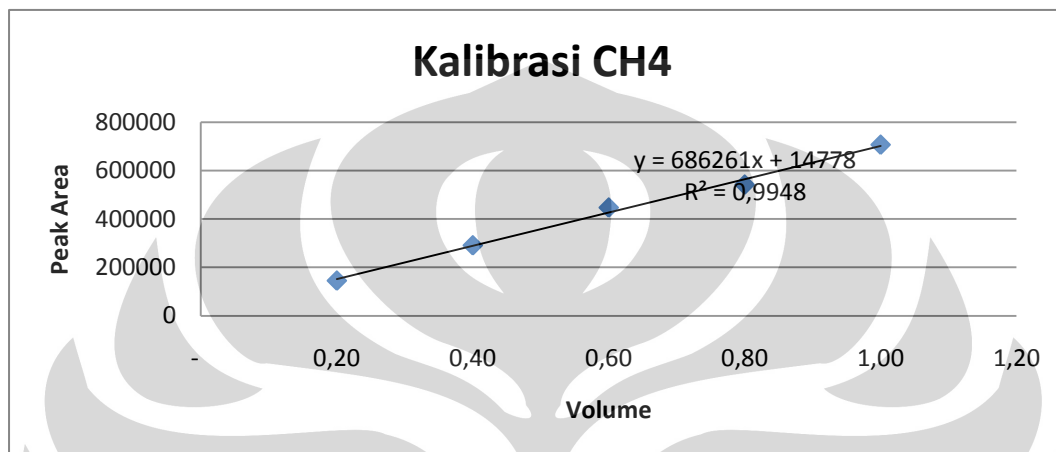


### LAMPIRAN E. HASIL KALIBRASI GAS CHROMATOGRAPHY

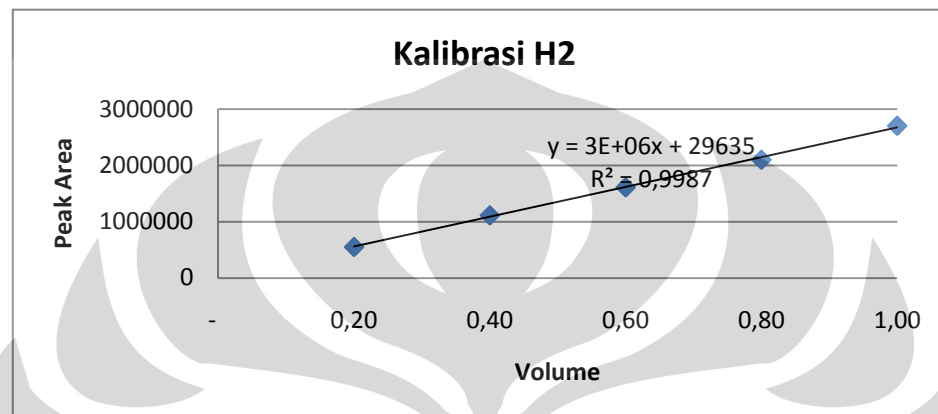
Temperatur INJ (Injection) = 130 °C  
 Temperatur COL (kolom) = 100 °C

#### 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

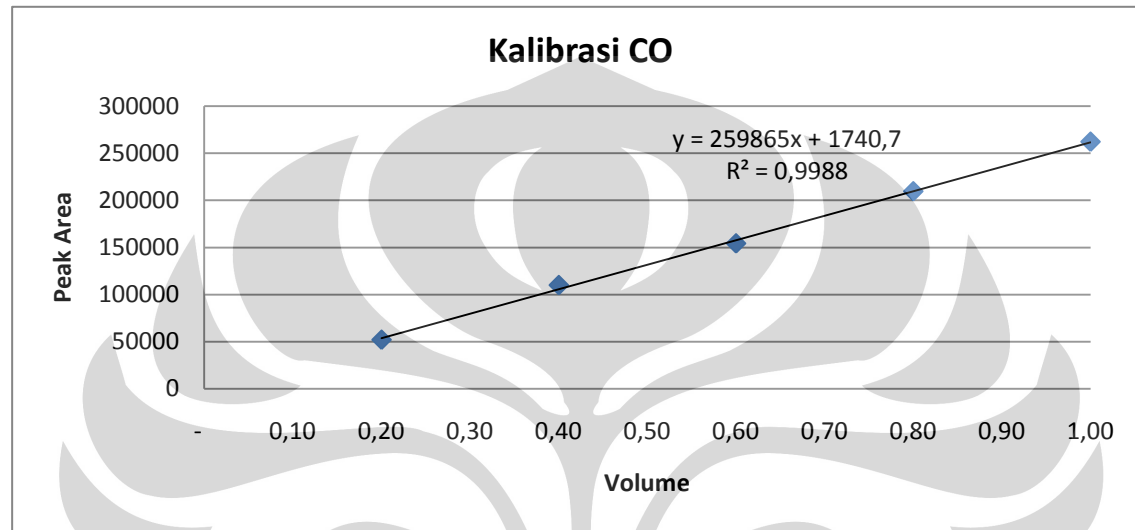
**Kalibrasi H2**

Volume	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$	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



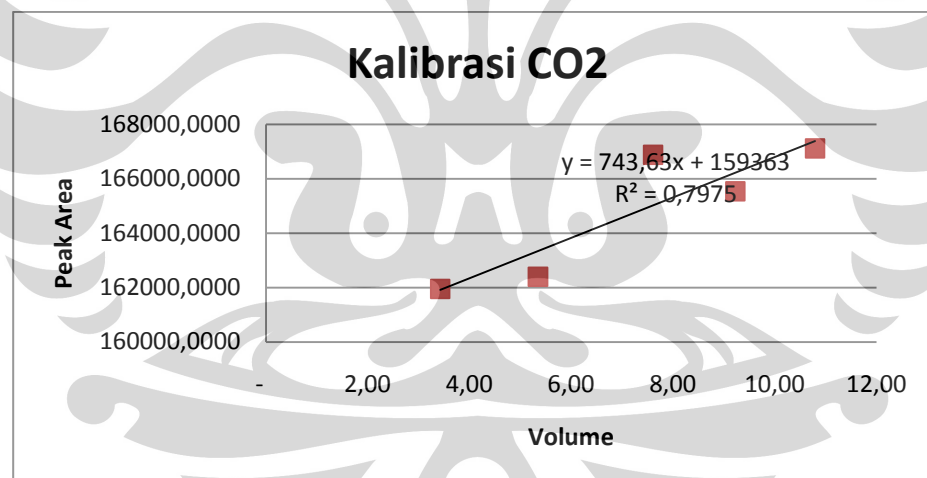
Kalibrasi CO

Volume	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$	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
										91,8774	0,847	157659,8000

**Kalibrasi CO2**

Flow (ml/min)	Flow Bubble Soap				Volume	Concentration		
	F1	F2	F3	Average		C1	C2	C3
40,00	21,43	20,07	20,11	20,54	3,42	97,1913	98,0463	98,2004
60,00				32,068	5,34	97,4001	97,9064	98,1230
80,00	45,87	45,52	45,55	45,65	7,61	99,1436	99,1801	99,2037
100,00	55,87	54,74	55,38	55,33	9,22	99,3458	99,3479	99,3836
120,00	65,65	64,38	64,19	64,74	10,79	99,4798	99,4708	99,5021

Retention Time			Peak Area			Mean		
$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$	PA1	PA2	PA3	Concentration	Retention Time	Peak Area
3,213	3,232	3,218	160815	162202	162823	97,8127	3,221	161946,6667
3,220	3,217	3,223	161551	162271	163369	97,8098	3,220	162397,0000
3,163	3,225	3,222	170695	164896	165052	99,1758	3,203	166881,0000
3,220	3,212	3,193	165389	165313	165908	99,3591	3,208	165536,6667
2,967	2,960	2,963	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





### LAMPIRAN F. HASIL UJI AKTIVITAS KATALIS

Waktu (menit)	Waktu (jam)	Volume bubble (ml)	Input		Output		Peak Area				Komposisi gas (y, %)			
			flow (ml/min)	kmol/h	Waktu bubble (detik)	flow (m <sup>3</sup> /hr)	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>
0	0	50	108,2251082	0,0002633	18,48	0,0097403	123785	891371	10235	4639	0,120176111	0,865383533	2,17E-08	9,8502E-09
5,00	0,083333333	50	99,43817432	0,000242	20,113	0,0089494	168632	632609	19014	7894	0,203625193	0,763883069	0,02296	0,009532101
10,00	0,166666667	50	94,6969697	0,0002304	21,12	0,0085227	153697	605481	24507	9809	0,193696487	0,76305681	0,030885	0,012361782
15,00	0,25	50	89,40545373	0,0002175	22,37	0,0080465	136971	616389	25982	10438	0,173429309	0,780456583	0,032898	0,013216339
20,00	0,333333333	50	89,80691513	0,0002185	22,27	0,0080826	128398	641190	27680	11029	0,158850027	0,793260398	0,034245	0,013644737

Volume (m <sup>3</sup> /h)				Out molar flow rate (kmol/h)				Konversi CH <sub>4</sub> (%)	Yield H <sub>2</sub> (%)	Kemurnian H <sub>2</sub> (%)
CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>			
0,001170547	0,00842906	2,117E-10	9,59435E-11	4,75501E-05	3,42E-04	8,60E-12	3,90E-12	81,94353927	79,33747854	86,5383533
0,001822331	0,006836322	0,0002055	8,53069E-05	7,4027E-05	2,78E-04	8,35E-06	3,47E-06	69,40531474	82,6834599	76,3883069
0,001650822	0,006503325	0,0002632	0,000105356	6,706E-05	2,64E-04	1,07E-05	4,28E-06	70,89710288	80,85611469	76,305681
0,001395497	0,006279937	0,0002647	0,000106345	5,66881E-05	2,55E-04	1,08E-05	4,32E-06	73,94224626	79,29404874	78,0456583
0,001283925	0,006411624	4396,9687	0,000110285	5,21558E-05	2,60E-04	1,79E+02	4,48E-06	76,13278349	78,2759866	79,3260398

**LAMPIRAN G. HASIL UJI *LIFETIME* KATALIS**

Waktu (menit)	Waktu (jam)	Volume bubble (ml)	Input		Output		Peak Area				Komposisi gas (y, %)			
			flow (ml/min)	kmol/h	Waktu bubble (detik)	flow (m <sup>3</sup> /hr)	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>
0	0	50	416,67	0,0010139	4,8	0,0375	199442	543065	19883	7836	0,258939584	0,705072277	4,22E-08	1,66385E-08
5,00	0,083333333	50	440,53	0,0010719	4,54	0,0396476	138141	687964	24124	8873	0,160796972	0,800794318	0,02808	0,010328226
10,00	0,166666667	50	471,70	0,0011478	4,24	0,0424528	122958	723355	25443	9163	0,139579235	0,82113679	0,028882	0,010401637
15,00	0,25	50	464,04	0,0011291	4,31	0,0417633	111296	748590	26752	9142	0,124244792	0,835685101	0,029864	0,010205631
70,00	1,166666667	50	231,48	0,0005633	8,64	0,0208333	25373	1108149	20763	1737	0,021948544	0,958588158	0,017961	0,001502567
85,00	1,416666667	50	231,48	0,0005633	8,64	0,0208333	25163	1125808	19603	1119	0,021475762	0,960838718	0,01673	0,000955028
100,00	1,666666667	50	232,56	0,0005659	8,6	0,0209302	26471	1124385	19374	307	0,022614407	0,960571943	0,016551	0,000262273
115,00	1,916666667	50	230,41	0,0005607	8,68	0,0207373	26815	1137299	18161	410	0,022672986	0,961624608	0,015356	0,000346669
130,00	2,166666667	50	230,41	0,0005607	8,68	0,0207373	27322	1148284	17342	838	0,022886849	0,961884291	0,014527	0,000701968
145,00	2,416666667	50	229,89	0,0005594	8,7	0,0206897	27524	1156629	16401	772	0,02291135	0,962793613	0,013652	0,000642623
160,00	2,666666667	50	224,72	0,0005468	8,9	0,0202247	25842	1142687	17466	482	0,021780447	0,963092416	0,014721	0,000406245
175,00	2,916666667	50	232,02	0,0005646	8,62	0,0208817	27809	1165220	15329	706	0,023000437	0,963737238	0,012678	0,000583923
190,00	3,166666667	50	236,69	0,0005759	8,45	0,0213018	28396	1167490	14585	251	0,023453774	0,964292381	0,012047	0,000207314
205,00	3,416666667	50	239,52	0,0005828	8,35	0,0215569	28872	1177271	14275	558	0,023646656	0,964204866	0,011691	0,000457011
220,00	3,666666667	50	242,34	0,0005897	8,253	0,0218103	28999	1179160	13741	428	0,023724401	0,964683784	0,011242	0,000350152
235,00	3,916666667	50	244,20	0,0005942	8,19	0,021978	29024	1179766	13152	308	0,023746369	0,965241154	0,01076	0,000251994
250,00	4,166666667	50	249,38	0,0006068	8,02	0,0224439	29348	1189342	12706	180	0,02382963	0,965707354	0,010317	0,000146154

265,00	4,416666667	50	246,52	0,0005998	8,113	0,0221866	29432	1193633	11962	414	0,023823072	0,966159452	0,009682	0,000335103
280,00	4,666666667	50	253,81	0,0006176	7,88	0,0228426	29754	1203676	11363	370	0,023895667	0,966681471	0,009126	0,00029715
295,00	4,916666667	50	250,75	0,0006101	7,976	0,0225677	29901	1213739	10766	320	0,023830701	0,967333904	0,00858	0,000255036
310,00	5,166666667	50	251,57	0,0006121	7,95	0,0226415	30023	1216048	10284	301	0,023891184	0,967685667	0,008184	0,000239525
325,00	5,416666667	50	254,45	0,0006192	7,86	0,0229008	30011	1220549	9149	167	0,023820598	0,968785023	0,007262	0,000132553
340,00	5,666666667	50	252,84	0,0006152	7,91	0,022756	30175	1225694	8870	236	0,023854226	0,968947212	0,007012	0,000186565
355,00	5,916666667	50	260,76	0,0006345	7,67	0,0234681	30537	1235728	7641	168	0,023967996	0,969902847	0,005997	0,00013186
370,00	6,166666667	50	262,12	0,0006378	7,63	0,0235911	30902	1239288	7140	149	0,02418983	0,970104401	0,005589	0,000116636
385,00	6,416666667	50	265,25	0,0006454	7,54	0,0238727	31313	1246356	6253	89	0,024386863	0,970673927	0,00487	6,9314E-05
400,00	6,666666667	50	265,96	0,0006471	7,52	0,0239362	31987	1258936	5015	74	0,024681099	0,97139224	0,00387	5,70982E-05
415,00	6,916666667	50	270,27	0,0006576	7,4	0,0243243	32528	1262657	4181		0,025033747	0,97174853	0,003218	0
430,00	7,166666667	50	274,73	0,0006685	7,28	0,0247253	33289	1277778			0,02539077	0,97460923	0	0
445,00	7,416666667	50	279,33	0,0006797	7,16	0,0251397	34376	1283103			0,026092256	0,973907744	0	0
460,00	7,666666667	50	284,09	0,0006913	7,04	0,0255682	34659	1289096			0,026182337	0,973817663	0	0
475,00	7,916666667	50	288,60	0,0007022	6,93	0,025974	35072	1295929			0,026350093	0,973649907	0	0
490,00	8,166666667	50	289,02	0,0007033	6,92	0,0260116	35390	1296316			0,026574935	0,973425065	0	0
505,00	8,416666667	50	298,06	0,0007253	6,71	0,0268256	35629	1301393			0,026648028	0,973351972	0	0
520,00	8,666666667	50	286,12	0,0006962	6,99	0,0257511	35650	1298711			0,026716908	0,973283092	0	0
535,00	8,916666667	50	295,86	0,0007199	6,76	0,0266272	35964	1304218			0,026835161	0,973164839	0	0
550,00	9,166666667	50	301,20	0,0007329	6,64	0,0271084	35924	1303129			0,026827915	0,973172085	0	0
565,00	9,416666667	50	315,96	0,0007688	6,33	0,028436	36246	1310268			0,026918398	0,973081602	0	0
580,00	9,666666667	50	315,96	0,0007688	6,33	0,028436	36318	1313435			0,026907145	0,973092855	0	0
595,00	9,916666667	50	305,81	0,0007441	6,54	0,0275229	36383	1313764			0,026947436	0,973052564	0	0

610,00	10,16666667	50	314,96	0,0007664	6,35	0,0283465	36345	1314769			0,026900025	0,973099975	0	0
625,00	10,41666667	50	301,20	0,0007329	6,64	0,0271084	36265	1314881			0,026840179	0,973159821	0	0
640,00	10,66666667	50	325,73	0,0007926	6,14	0,029316	36286	1317631			0,026800757	0,973199243	0	0
655,00	10,91666667	50	310,56	0,0007557	6,44	0,0279503	36187	1316597			0,026750021	0,973249979	0	0
670,00	11,16666667	50	328,41	0,0007991	6,09	0,0295567	36277	1319658			0,026754232	0,973245768	0	0
685,00	11,41666667	50	367,65	0,0008946	5,44	0,0330882	36689	1331703			0,026811762	0,973188238	0	0
700,00	11,66666667	50	375,23	0,000913	5,33	0,0337711	36612	1331068			0,02676942	0,97323058	0	0
715,00	11,91666667	50	404,86	0,0009851	4,94	0,0364372	36535	1332568			0,026685355	0,973314645	0	0
730,00	12,16666667	50	427,35	0,0010399	4,68	0,0384615	36557	1334464			0,02666407	0,97333593	0	0
745,00	12,41666667	50	332,78	0,0008097	6,01	0,0299501	36722	1336822			0,026735219	0,973264781	0	0
765,00	12,75	50	327,87	0,0007978	6,1	0,0295082	36493	1337842			0,026553206	0,973446794	0	0
785,00	13,08333333	50	318,98	0,0007762	6,27	0,0287081	36396	1336518			0,026510036	0,973489964	0	0
805,00	13,41666667	50	345,42	0,0008405	5,79	0,0310881	36330	1335652			0,026479939	0,973520061	0	0
825,00	13,75	50	312,99	0,0007616	6,39	0,028169	37381	1359088			0,026768228	0,973231772	0	0
845,00	14,08333333	50	434,78	0,0010579	4,6	0,0391304	38666	1351422			0,027815505	0,972184495	0	0
865,00	14,41666667	50	421,94	0,0010267	4,74	0,0379747	38571	1355099			0,027675849	0,972324151	0	0
885,00	14,75	50	379,51	0,0009234	5,27	0,0341556	37799	1354421			0,027150163	0,972849837	0	0
905,00	15,08333333	50	424,63	0,0010332	4,71	0,0382166	38369	1351578			0,02760465	0,97239535	0	0
925,00	15,41666667	50	498,75	0,0012136	4,01	0,0448878	39426	1345911			0,028459501	0,971540499	0	0
945,00	15,75	50	435,73	0,0010603	4,59	0,0392157	38538	1350744			0,027739509	0,972260491	0	0
965,00	16,08333333	50	484,26	0,0011783	4,13	0,0435835	39030	1348663			0,028125817	0,971874183	0	0
985,00	16,41666667	50	400,80	0,0009753	4,99	0,0360721	38098	1354186			0,02736367	0,97263633	0	0
1005,00	16,75	50	423,73	0,001031	4,72	0,0381356	38200	1352624			0,027465733	0,972534267	0	0

1025,00	17,08333333	50	436,68	0,0010626	4,58	0,0393013	38100	1347750			0,027492153	0,972507847	0	0
---------	-------------	----	--------	-----------	------	-----------	-------	---------	--	--	-------------	-------------	---	---

Volume (m <sup>3</sup> /h)				Out molar flow rate (kmol/h)				Konversi CH <sub>4</sub> (%)	Yield H <sub>2</sub> (%)	Kemurnian H <sub>2</sub> (%)
CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	CO	CO <sub>2</sub>			
0,009710234	0,02644021	1,583E-09	6,23945E-10	0,000394451	1,07E-03	6,43E-11	2,53E-11	61,09432751	86,69962827	70,5072277
0,00637521	0,031749554	0,0011133	0,000409489	0,000258975	1,29E-03	4,52E-05	1,66E-05	75,840255	79,32419679	80,0794318
0,005925534	0,034859581	0,0012261	0,000441579	0,000240708	1,42E-03	4,98E-05	1,79E-05	79,02821996	78,05806759	82,113679
0,005188878	0,034901002	0,0012472	0,000426221	0,000210783	1,42E-03	5,07E-05	1,73E-05	81,33221996	77,19061801	83,5685101
0,000457261	0,019970587	455,71762	3,13035E-05	1,85749E-05	8,11E-04	1,85E+01	1,27E-06	96,70223123	74,46977643	95,8588158
0,000447412	0,020017473	420,98936	1,98964E-05	1,81748E-05	8,13E-04	1,71E+01	8,08E-07	96,77326676	74,58982331	96,0838718
0,000473325	0,020104994	438,13152	5,48943E-06	1,92275E-05	8,17E-04	1,78E+01	2,23E-07	96,60218536	74,70117463	96,0571943
0,000470177	0,019941524	411,76409	7,18898E-06	1,90996E-05	8,10E-04	1,67E+01	2,92E-07	96,59338391	74,78985183	96,1624608
0,000474612	0,019946909	396,90374	1,45569E-05	1,92798E-05	8,10E-04	1,61E+01	5,91E-07	96,56125093	74,83494327	96,1884291
0,000474028	0,019919868	375,76905	1,32957E-05	1,9256E-05	8,09E-04	1,53E+01	5,40E-07	96,55756972	74,9085446	96,2793613
0,000440503	0,019478274	380,4173	8,21619E-06	1,78942E-05	7,91E-04	1,55E+01	3,34E-07	96,72748776	74,80016218	96,3092416
0,000480288	0,020124443	352,57369	1,21933E-05	1,95103E-05	8,17E-04	1,43E+01	4,95E-07	96,54418439	74,99235761	96,3737238
0,000499607	0,020541139	342,07329	4,41616E-06	2,02951E-05	8,34E-04	1,39E+01	1,79E-07	96,47607048	75,08853207	96,4292381
0,000509748	0,020785255	337,55602	9,85174E-06	2,07071E-05	8,44E-04	1,37E+01	4,00E-07	96,44708987	75,10427803	96,4204866
0,000517435	0,021039995	325,997	7,63689E-06	2,10193E-05	8,55E-04	1,32E+01	3,10E-07	96,4354087	75,15068399	96,4683784
0,000521898	0,021214091	312,31225	5,53834E-06	2,12006E-05	8,62E-04	1,27E+01	2,25E-07	96,432108	75,19667792	96,5241154
0,00053483	0,02167423	302,77927	3,28027E-06	2,17259E-05	8,80E-04	1,23E+01	1,33E-07	96,41959814	75,24275807	96,5707354
0,000528553	0,021435807	284,97159	7,4348E-06	2,1471E-05	8,71E-04	1,16E+01	3,02E-07	96,42058342	75,27721394	96,6159452

0,00054584	0,022081556	271,52646	6,78769E-06	2,21732E-05	8,97E-04	1,10E+01	2,76E-07	96,40967608	75,32640751	96,6681471
0,000537804	0,021830504	256,56133	5,75557E-06	2,18468E-05	8,87E-04	1,04E+01	2,34E-07	96,41943719	75,36961597	96,7333904
0,000540932	0,021909864	245,69694	5,4232E-06	2,19739E-05	8,90E-04	9,98E+00	2,20E-07	96,41034957	75,40413045	96,7685667
0,00054551	0,022185917	217,93465	3,03556E-06	2,21598E-05	9,01E-04	8,85E+00	1,23E-07	96,42095512	75,48149133	96,8785023
0,000542827	0,022049368	211,58699	4,24547E-06	2,20508E-05	8,96E-04	8,60E+00	1,72E-07	96,41590249	75,49808429	96,8947212
0,000562482	0,022761736	183,13945	3,09451E-06	2,28493E-05	9,25E-04	7,44E+00	1,26E-07	96,39880866	75,58594592	96,9902847
0,000570664	0,022885818	172,71539	2,75157E-06	2,31816E-05	9,30E-04	7,02E+00	1,12E-07	96,36547802	75,62780221	97,0104401
0,00058218	0,023172587	152,49105	1,65471E-06	2,36494E-05	9,41E-04	6,19E+00	6,72E-08	96,33587387	75,69545575	97,0673927
0,000590771	0,02325141	123,77571	1,36671E-06	2,39984E-05	9,45E-04	5,03E+00	5,55E-08	96,29166493	75,78625014	97,139224
0,000608929	0,023637126	104,6661	0	2,4736E-05	9,60E-04	4,25E+00	0,00E+00	96,23867948	75,8557876	97,174853
0,000627794	0,024097481	0	0	2,55023E-05	9,79E-04	0,00E+00	0,00E+00	96,18503688	76,12152661	97,460923
0,000655951	0,024483714	0	0	2,66461E-05	9,95E-04	0,00E+00	0,00E+00	96,07963846	76,15018166	97,3907744
0,000669435	0,024898747	0	0	2,71939E-05	1,01E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,06610381	76,15386594	97,3817663
0,000684418	0,025289608	0	0	2,78025E-05	1,03E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,04089854	76,16072984	97,3649907
0,000691256	0,025320305	0	0	2,80803E-05	1,03E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,00711606	76,16993514	97,3425065
0,00071485	0,026110783	0	0	2,90388E-05	1,06E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,99613376	76,17292907	97,3351972
0,000687989	0,025063084	0	0	2,79476E-05	1,02E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,98578458	76,17575103	97,3283092
0,000714546	0,025912673	0	0	2,90264E-05	1,05E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,96801703	76,18059722	97,3164839
0,000727263	0,026381171	0	0	2,9543E-05	1,07E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,96910578	76,18030021	97,3172085
0,000765452	0,027670567	0	0	3,10943E-05	1,12E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,95551067	76,18400947	97,3081602
0,000765132	0,027670887	0	0	3,10813E-05	1,12E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,95720143	76,18354811	97,3092855
0,000741673	0,026781263	0	0	3,01283E-05	1,09E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,95114773	76,18520007	97,3052564
0,00076252	0,027583936	0	0	3,09752E-05	1,12E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,95827129	76,18325618	97,3099975
0,000727595	0,026380839	0	0	2,95565E-05	1,07E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,96726316	76,18080288	97,3159821

0,00078569	0,028530271	0	0	3,19164E-05	1,16E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,97318632	76,17918709	97,3199243
0,000747671	0,027202639	0	0	3,0372E-05	1,11E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,98080939	76,17710786	97,3249979
0,000790765	0,028765885	0	0	3,21226E-05	1,17E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,98017659	76,17728045	97,3245768
0,000887154	0,032201081	0	0	3,60381E-05	1,31E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,97153283	76,17963813	97,3188238
0,000904033	0,032867074	0	0	3,67238E-05	1,34E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,97789468	76,17790282	97,323058
0,000972341	0,035464906	0	0	3,94986E-05	1,44E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,99052537	76,17445826	97,3314645
0,001025541	0,037435997	0	0	4,16597E-05	1,52E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,99372347	76,17358624	97,333593
0,000800722	0,029149361	0	0	3,25271E-05	1,18E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,98303331	76,17650134	97,3264781
0,000783537	0,02872466	0	0	3,1829E-05	1,17E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,01038084	76,16904524	97,3446794
0,000761054	0,02794708	0	0	3,09157E-05	1,14E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,01686704	76,16727745	97,3489964
0,000823211	0,030264872	0	0	3,34406E-05	1,23E-03	0,00E+00	0,00E+00	96,02138913	76,16604512	97,3520061
0,000754035	0,02741498	0	0	3,06305E-05	1,11E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,97807381	76,17785397	97,3231772
0,001088433	0,038042002	0	0	4,42145E-05	1,55E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,82072034	76,22084233	97,2184495
0,001050982	0,036923702	0	0	4,26932E-05	1,50E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,84170374	76,21510159	97,2324151
0,00092733	0,033228268	0	0	3,76702E-05	1,35E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,920688	76,19351521	97,2849837
0,001054955	0,037161606	0	0	4,28546E-05	1,51E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,85240139	76,21217584	97,239535
0,001277484	0,043610297	0	0	5,18942E-05	1,77E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,72395995	76,24734707	97,1540499
0,001087824	0,038127862	0	0	4,41898E-05	1,55E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,83213883	76,21771809	97,2260491
0,001225823	0,042357713	0	0	4,97956E-05	1,72E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,77409593	76,23360707	97,1874183
0,000987066	0,035085078	0	0	4,00968E-05	1,43E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,88860857	76,20227822	97,263633
0,001047422	0,037088171	0	0	4,25486E-05	1,51E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,87327369	76,20646926	97,2534267
0,001080478	0,038220832	0	0	4,38913E-05	1,55E-03	0,00E+00	0,00E+00	95,86930404	76,20755439	97,2507847