



UNIVERSITAS INDONESIA

**PENUMBUHAN NANOKARBON PADA *CARBON FOAM*
MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK METANA
UNTUK MENINGKATKAN LUAS PERMUKAAN *CARBON*
FOAM SEBAGAI SUBSTRAT KATALIS TERSTRUKTUR**

SKRIPSI

**FRISKA AMALLIA
0706269786**

**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
DESEMBER 2010**



UNIVERSITAS INDONESIA

**PENUMBUHAN NANOKARBON PADA *CARBON FOAM*
MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK METANA
UNTUK MENINGKATKAN LUAS PERMUKAAN *CARBON*
FOAM SEBAGAI SUBSTRAT KATALIS TERSTRUKTUR**

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana

**FRISKA AMALLIA
0706269786**

**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
DESEMBER 2010**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

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

Nama : Friska Amallia
NPM : 0706269786
Tanda Tangan :
Tanggal : 4 Januari 2011

HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh

Nama : Friska Amallia
NPM : 0706269786
Program Studi : Teknik Kimia
Judul Skripsi : Penumbuhan Nanokarbon pada *Carbon Foam* melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Meningkatkan Luas Permukaan *Carbon Foam* sebagai Substrat Katalis Terstruktur

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 : Dr.rer.nat. Ir. Yuswan Muharam, MT ()
Pembimbing II : Ir. Praswasti PDK Wulan, MT ()
Penguji I : Dr. Ir. Asep Handaya Saputra, M.Eng ()
Penguji II : Ir. Mahmud Sudibandriyo, MSc., PhD ()
Penguji II : Ir. Tania Surya Utami, MT ()

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 4 Januari 2011

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur saya panjatkan kepada Tuhan Yang Maha Esa, karena atas rahmat dan karunia-Nya saya dapat menyelesaikan skripsi ini. Skripsi dengan judul “Penumbuhan Nanokarbon pada *Carbon Foam* melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Meningkatkan Luas Permukaan *Carbon Foam* sebagai Substrat Katalis Terstruktur” ini disusun dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Teknik Program Studi 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, sangatlah sulit bagi saya untuk menyelesaikan skripsi ini. Oleh karena itu, saya mengucapkan terima kasih kepada:

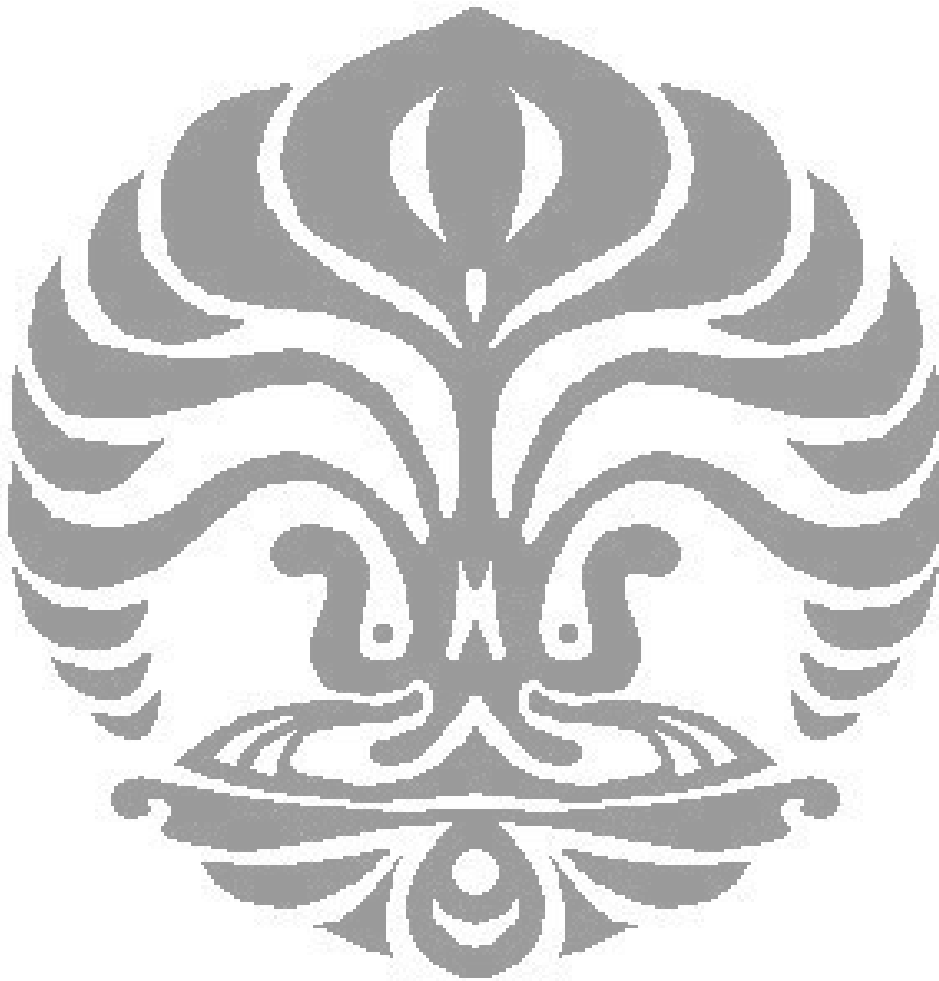
1. Tuhan Yang Maha Esa
2. Dr. rer. nat. Yuswan Muharam, MT. dan Ir. Praswasti PDK Wulan, MT., selaku dosen pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran untuk mengarahkan saya dalam penyusunan skripsi ini;
3. Prof. Dr. Ir. Widodo Wahyu Purwanto, DEA selaku ketua Departemen Teknik Kimia FTUI dan seluruh dosen Departemen Teknik Kimia FTUI yang telah mengajar dan memberi saya wawasan sebagai mahasiswa teknik kimia;
4. Orang tua dan keluarga saya yang telah memberikan bantuan dukungan material dan moral;
5. M. Hilman Anshari atas perhatian dan dukungannya yang membuat saya selalu bersemangat dalam menyelesaikan skripsi ini;
6. Isdiana Karina Putri sebagai rekan penelitian yang selalu berjuang bersama dalam menyelesaikan skripsi serta sahabat-sahabat yang selalu mendukung kami: Suci, Anna, Lina, Zay, dan Muthia;
7. Estu Fitri, Rizka Yulina, dan Shantya Shafa sebagai senior yang telah memberikan ilmunya;
8. Teman-teman yang telah banyak membantu saya dalam menyelesaikan skripsi ini: Apit, Menner, Sukma, Nonggi, Skripsi, Ers, yang telah memberikan bantuan tenaga dan juga kepada teman-teman Teknik Kimia UI angkatan 2007 lainnya yang tidak dapat disebutkan satu-persatu; serta

9. Kang Jajat dan Mang Ijal selaku teknisi laboratorium yang telah membantu saya secara teknis.

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

Depok, 4 Januari 2011

Penulis



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

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

Nama : Friska Amallia

NPM : 0706269786

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:

“Penumbuhan Nanokarbon pada *Carbon Foam* melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Meningkatkan Luas Permukaan *Carbon Foam* sebagai Substrat Katalis Terstruktur”

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 : 4 Januari 2011

Yang menyatakan,

(Friska Amallia)

ABSTRAK

Nama : Friska Amallia
Program Studi : Teknik Kimia
Judul : Penumbuhan Nanokarbon pada *Carbon Foam* melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana untuk Meningkatkan Luas Permukaan *Carbon Foam* sebagai Substrat Katalis Terstruktur

Carbon foam merupakan material yang menjanjikan sebagai substrat katalis terstruktur karena keunggulan sifatnya yang memiliki luas permukaan yang besar serta *pressure drop* yang rendah. Penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dapat menghasilkan luas permukaan yang jauh lebih besar untuk deposisi inti aktif katalis. Penumbuhan nanokarbon dilakukan melalui reaksi dekomposisi katalitik metana dengan katalis nikel pada suhu 500°C selama 5 jam. Katalis nikel dipreparasi menggunakan metode presipitasi. *Precipitating agent* yang digunakan adalah urea dan amonia. Deposisi katalis nikel dengan urea dilakukan selama 12 jam dan 24 jam, dengan *loading* masing-masing sebesar 0,0285 dan 0,0448 g Ni/g CF. Hasil deposisi katalis dikarakterisasi menggunakan SEM. Hasil SEM menunjukkan bahwa waktu deposisi yang lebih lama menghasilkan dispersi katalis yang lebih merata. Hasil penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dikarakterisasi menggunakan SEM dan BET. Hasil SEM menunjukkan bahwa pertumbuhan nanokarbon belum optimal, sedangkan hasil BET menunjukkan peningkatan luas permukaan *carbon foam* sebesar 11,55 m²/g.

Kata kunci: *carbon foam*, dekomposisi katalitik metana, substrat katalis, nanokarbon.

ABSTRACT

Name : Friska Amallia
Study Program : Chemical Engineering
Title : Synthesis Nanocarbon on Carbon Foam through Methane Catalytic Decomposition to Increase Surface Area of Carbon Foam as Catalyst Support

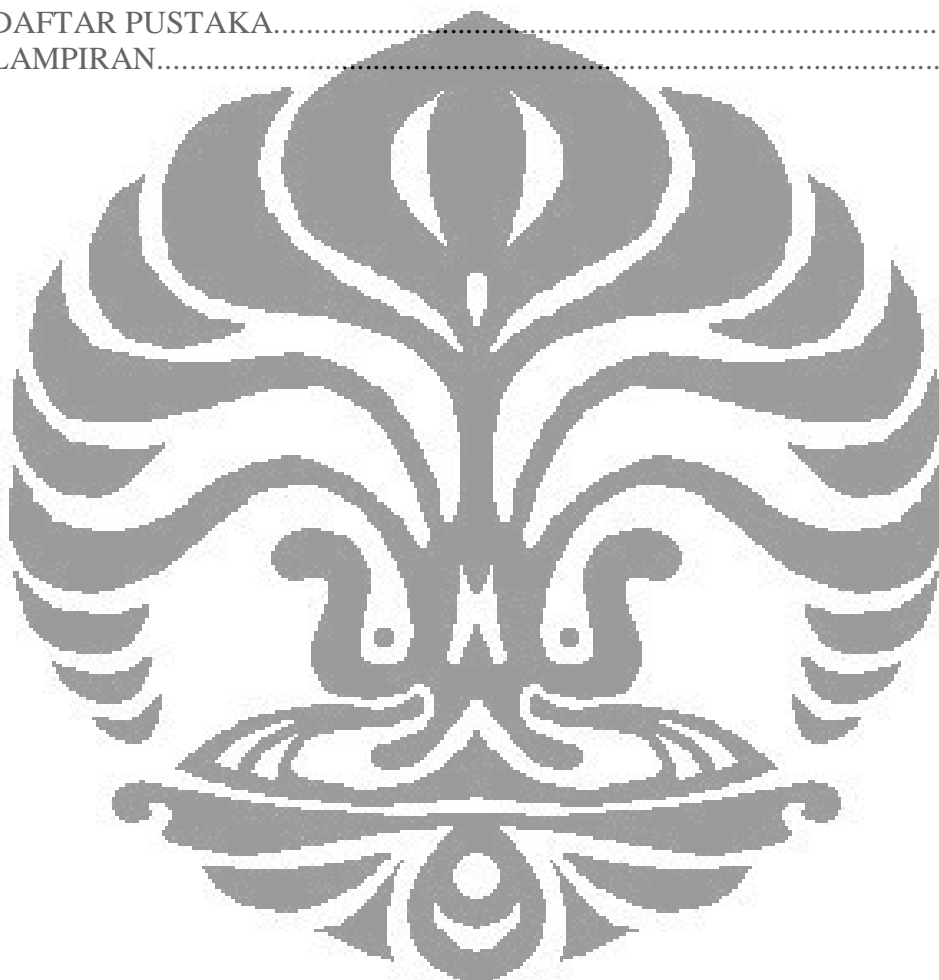
Carbon foam is a promising material for structured catalyst support because it offers high surface area and low pressure drop. Growth of nanocarbon on carbon foam increasing accessible surface area of carbon foam to deposit catalyst particle. Growth of nanocarbon was done by catalytic decomposition of methane at 500°C. Reaction occurred in 5 hours. The catalyst used in this reaction is nickel which has been prepared by precipitation method, using urea and ammonia as precipitating agent. Deposition of nickel catalyst using urea as precipitation agent was carried out for 12 hours and 24 hours. Each deposition time produced different catalyst loading, which are 0.0285 and 0.0448 g Ni/g CF respectively. Products of deposition were characterized using SEM. SEM results showed that a longer deposition time produces a more uniform dispersion of catalysts. Product of nanocarbon growth on carbon foam was characterized using SEM and BET. SEM results showed a poor quality of nanocarbon grown on carbon foam, while the BET results showed an increasing surface area of 11.55 m²/g approximately.

Keywords : carbon foam, catalytic decomposition of methane, nanocarbon, structural catalyst.

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
KATA PENGANTAR.....	iv
LEMBAR PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH.....	vi
ABSTRAK.....	vii
ABSTRACT.....	viii
DAFTAR ISI.....	ix
DAFTAR GAMBAR.....	xi
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xii
DAFTAR SINGKATAN.....	xiv
1. PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Rumusan Masalah.....	4
1.3 Tujuan Penelitian.....	4
1.4 Batasan Masalah.....	4
1.5 Sistematika Penulisan.....	5
2. TINJAUAN PUSTAKA.....	7
2.1 Reaksi Katalitik Heterogen.....	7
2.2 Katalis Terstruktur sebagai Pengganti Katalis Padat Konvensional.....	8
2.3 Komposit Nanokarbon- <i>Carbon Foam</i> sebagai Substrat Katalis.....	9
2.3.1 <i>Carbon Foam</i>	9
2.3.2 Nanokarbon.....	11
2.3.3 Komposit Nanokarbon- <i>Carbon Foam</i>	14
2.4 Pembuatan Komposit Nanokarbon- <i>Carbon Foam</i>	15
2.5 Mekanisme Pertumbuhan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	17
2.6 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	21
2.7 Preparasi Katalis melalui Metode Presipitasi.....	23
2.8 Metode Karakterisasi.....	24
2.8.1 BET.....	25
2.8.2 <i>Scanning Electron Microscopy</i>	11
3. METODE PENELITIAN.....	26
3.1 Diagram Penelitian.....	27
3.2 Prosedur Penelitian.....	28
3.2.1 Preparasi <i>Carbon Foam</i>	28
3.2.2 Deposisi Katalis.....	28
3.2.3 <i>Set-up</i> Reaktor.....	30
3.2.4 Sintesis Nanokarbon.....	31
3.2.5 Karakterisasi.....	31
3.3 Alat dan Bahan.....	32

4. HASIL DAN PEMBAHASAN.....	33
4.1 Deposisi dan Karakterisasi Katalis.....	33
4.1.1 Deposisi Menggunakan Urea.....	34
4.1.2 Deposisi Menggunakan Amonia.....	40
4.1.1 Perbandingan Hasil Deposisi Menggunakan Urea dan Amonia....	42
4.2 Penumbuhan Nanokarbon pada <i>Carbon Foam</i>	44
5. KESIMPULAN DAN SARAN.....	49
5.1. Kesimpulan.....	49
5.2. Saran.....	49
DAFTAR PUSTAKA.....	51
LAMPIRAN.....	54



DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Gambar perspektif 3D struktur kisi-kisi <i>carbon foam</i> per unit sel...	10
Gambar 2.2. Berbagai bentuk alotropik karbon: (a) intan, (b) grafit, (c) <i>fullerene</i>	12
Gambar 2.3. (a) <i>Single Walled Carbon Nanotube</i> (b) <i>Multi-Walled carbon Nanotube</i>	13
Gambar 2.4. (a) Struktur <i>carbon cone</i> (b) Hasil SEM <i>carbon cone</i>	13
Gambar 2.5. Inversi katalis <i>packed bed</i> berpori ke dalam <i>solid foam</i> yang ditumbuhi nanokarbon (warna hitam menunjukkan solid, warna putih menunjukkan ruang kosong)	15
Gambar 2.6. Skema <i>arch-discharge</i>	16
Gambar 2.7 Skema <i>Laser Ablation</i>	16
Gambar 2.8 Skema proses CVD.....	17
Gambar 2.9 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana.....	18
Gambar 2.10. Skema pertumbuhan CNF.....	20
Gambar 2.11. Kurva <i>Volcano</i>	22
Gambar 2.12. Hubungan antara kelarutan terhadap konsentrasi dan temperatur dalam proses pengendapan	24
Gambar 3.1. Diagram Alir Penelitian	27
Gambar 3.2. Rangkaian peralatan.....	30
Gambar 3.3. Reaktor <i>fixed bed</i> untuk reaksi dekomposisi katalitik metana.....	30
Gambar 4. 1 Gugus yang terbentuk pada <i>carbon foam</i> akibat oksidasi menggunakan asam nitrat; (a) hidroksil, (b) karbonil	33
Gambar 4.2. Titik pengambilan gambar SEM.....	35
Gambar 4.3. Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan <i>carbon foam</i> sampel C1 pada tiga titik yang berbeda; (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3.....	36
Gambar 4.4. Hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi menunjukkan empat jenis daerah yang berbeda pada permukaan <i>carbon foam</i>	37

Gambar 4. 5. Hasil SEM yang menunjukkan perbedaan bentuk struktur kristal nikel hidroksida pada permukaan <i>carbon foam</i> ; (a) <i>leaflet structure</i> (b) <i>spongy structure</i>	38
Gambar 4.6. Hasil SEM yang menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang lebih merata pada permukaan sampel C2 yang diambil pada tiga titik yang berbeda; (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3.....	39
Gambar 4.7. Hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang homogen pada sampel C2.....	39
Gambar 4.8. Hasil deposisi menggunakan amonia yang belum terlihat adanya endapan nikel	40
Gambar 4.9. Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan <i>carbon foam</i> sampel C3 pada tiga titik yang berbeda; (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3.....	41
Gambar 4.10. Hasil SEM yang menunjukkan bahwa deposisi menggunakan amonia selama 48 jam menghasilkan lapisan nikel yang tebal pada permukaan <i>carbon foam</i>	41
Gambar 4.11. Hasil SEM yang menunjukkan perbedaan struktur kristal nikel yang terbentuk pada permukaan <i>carbon foam</i> ketiga sampel; (a) Sampel C1, (b) Sampel C2, (c) Sampel C3.....	42
Gambar 4.12. Hasil SEM yang menunjukkan perbandingan hasil deposisi pada ketiga sampel; (a) Sampel C1, (b) Sampel C2, (c) Sampel C3.....	43
Gambar 4.13. <i>Carbon foam</i> sebelum (a) dan setelah (b) reaksi dekomposisi metana.....	45
Gambar 4.14. Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan <i>carbon foam</i> setelah reaksi dekomposisi metana. Bagian yang dilingkari merah diduga sebagai daerah yang ditumbuhi nanokarbon.....	46
Gambar 4. 15. Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan <i>carbon foam</i> yang memperlihatkan bentuk serat-serat yang diduga sebagai nanokarbon jenis filamen.....	46
Gambar 4. 16. Hasil analisis EDX pada titik yang diduga serat nanokarbon.....	47

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1. Perbandingan sifat elastis <i>carbon foam</i> terhadap intan dan grafit	9
Tabel 2.2. Perbandingan sifat karbon nanofilamen dan logam	13
Tabel 2.3. <i>State of the art</i> penumbuhan nanokarbon pada berbagai jenis substrat katalis terstruktur.....	14
Tabel 4.1. Hasil <i>loading</i> nikel untuk deposisi menggunakan urea dengan waktu deposisi yang berbeda.....	35
Tabel 4.2. Hasil deposisi menggunakan amonia.....	40
Tabel 4.3. Perbandingan hasil deposisi ketiga sampel, C1, C2, dan C3.....	43

DAFTAR LAMPIRAN

LAMPIRAN A. PERHITUNGAN KEBUTUHAN AMONIA.....	54
A.1 Perhitungan Secara Stoikiometri.....	54
A.2 Perhitungan Kebutuhan Amonia hingga Terbentuk Endapan Pertama.....	55
LAMPIRAN B. HASIL KARAKTERISASI KOMPOSIT NANOKARBON-CARBON FOAM MENGGUNAKAN SEM EDX.....	56
LAMPIRAN C. HASIL KARAKTERISASI BET.....	57
C.1 Hasil Karakterisasi BET untuk <i>Carbon Foam</i> Kosong.....	57
C.2 Hasil Karakterisasi BET untuk Komposit Nanokarbon- <i>Carbon Foam</i>	58

DAFTAR SINGKATAN

CNT	= <i>Carbon Nanotube</i>
SWNT	= <i>Single-walled Nanotube</i>
MWNT	= <i>Multi-walled Nanotube</i>
MDR	= <i>Methane Decompositon Reaction</i>
CNF	= <i>Carbon Nanofiber</i>
CVD	= <i>Chemical Vapour Deposition</i>



BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar belakang

Pada industri kimia, katalis merupakan salah satu faktor penting yang menentukan performa reaksi dan hasil produksi secara menyeluruh. Hampir seluruh industri kimia menggunakan katalis untuk mempercepat reaksi dan mengarahkan proses produksinya menjadi lebih efisien, baik dari segi waktu, kondisi operasi, maupun konversi. Hal tersebut menyebabkan permintaan pasar akan katalis terus meningkat setiap tahunnya. Pada tahun 2006, *global market for energy and environmental catalysts* mencapai \$12,2 miliar dan diperkirakan mencapai \$15,1 miliar pada tahun 2009. Pasar ini diperkirakan akan terus meningkat hingga lebih dari \$16,3 miliar pada tahun 2010 dan mendekati angka \$22,5 miliar pada tahun 2015, dengan pertumbuhan tahunan sebesar 6,6% dari 2010 hingga 2015 (BCCResearch, 2010).

Katalis tersebut digolongkan dalam dua kategori, yaitu katalis yang digunakan untuk industri, khususnya industri yang bergerak di bidang energi (*energy catalyst*), dan katalis yang digunakan untuk menangani masalah lingkungan (*environmental catalyst*), seperti katalis yang digunakan dalam *waste treatment*. Berdasarkan data yang dilaporkan oleh Andrew (2010) dari BCCResearch, pasar katalis untuk industri energi selalu lebih besar dibandingkan dengan pasar katalis untuk lingkungan. Diperkirakan, penjualan katalis industri energi tersebut akan mengalami peningkatan pertumbuhan tahunan tertinggi hingga 8,1%. Hal ini menunjukkan bahwa industri energi, maupun industri kimia lainnya, tidak bisa terlepas dari penggunaan katalis.

Katalis yang digunakan dalam industri saat ini kebanyakan merupakan katalis padat konvensional dengan berbagai bentuk seperti pelet, bola (*sphere*), butiran (*granule*), serpihan, atau bubuk. Bentuk katalis tersebut mudah untuk diproduksi, namun memiliki banyak kekurangan dalam penggunaannya di dalam reaktor. Bentuk katalis seperti itu biasanya terdistribusi secara tidak teratur di dalam reaktor dan menyebabkan *pressure drop* yang sangat besar. Atas dasar tersebut, saat ini banyak dikembangkan sistem katalis terstruktur untuk

menggantikan katalis konvensional. Kelebihan katalis terstruktur dibandingkan dengan katalis konvensional antara lain: aliran yang seragam, *pressure drop* yang rendah, distribusi katalis yang teratur, dan tidak sensitif terhadap *fouling* akibat debu.

Katalis terstruktur sendiri sebenarnya sudah banyak diaplikasikan untuk menangani berbagai masalah lingkungan. Sebagai contoh adalah *catalytic converter*, yaitu katalis yang digunakan pada kendaraan bermotor untuk mengendalikan emisi gas buang kendaraan. Katalis tersebut berupa logam Pt dan Rh yang disangga pada keramik berbentuk monolitik. Keramik ini tertutupi lapisan setebal 30-50 μm yang terbuat dari $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ (70-85%) dan oksida lain seperti serium oksida (10-30%), lantanum oksida, atau barium oksida (Nasikin, 2010). Dengan menggunakan katalis ini, zat-zat beracun emisi gas kendaraan seperti CO_x dan NO_x dapat diubah menjadi senyawa yang kurang berbahaya.

Sedangkan jenis terbaru dari katalis terstruktur yang sedang dikembangkan adalah *solid foam*. *Solid foam* merupakan *open-celled material* yang memiliki porositas tinggi. Ukuran sel *solid foam* dinyatakan dalam *pores per linear inch* (PPI) dan dapat bervariasi antara 5 sampai 100 PPI, dengan porositas berkisar antara 80% sampai 97% (Wenmakers, 2008). Namun, penggunaan *solid foam* sebagai substrat katalis terstruktur masih memiliki kekurangan dalam hal deposisi inti aktif katalis. Ketidakhadiran atau kurangnya jumlah mikropori pada *foam* menyebabkan rendahnya luas permukaan yang tersedia untuk deposisi katalis. Untuk memperbaiki kekurangan *foam* tersebut, salah satu cara yang dapat dilakukan adalah dengan menumbuhkan nanokarbon pada *foam*.

Nanokarbon diketahui memiliki luas permukaan spesifik yang sangat besar yaitu mencapai $1315 \text{ m}^2/\text{g}$ untuk jenis *single-walled carbon nanotube* (Cordier, 2005). Selain itu, nanokarbon memiliki kombinasi sifat struktur yang sempurna, yakni ukuran yang kecil, densitas yang rendah, serta stabilitas yang tinggi. Kombinasi nanokarbon dan *solid foam* dapat menghasilkan luas permukaan yang jauh lebih besar. Jika sebelumnya inti aktif katalis hanya dapat dideposisikan pada pori-pori *carbon foam*, kini inti aktif tersebut dapat dideposisikan juga pada seluruh permukaan luar nanokarbon.

Beberapa penelitian untuk menumbuhkan nanokarbon pada *solid foam* telah dilakukan, diantaranya menggunakan *foam* yang berbahan dasar keramik dan logam. Pada tahun 2005, Cordier melakukan penelitian berupa penumbuhan *carbon nanotube* (CNT) pada keramik *foam* melalui *Catalytic Chemical Vapor Deposition* (CCVD) dengan menggunakan katalis berbasis Mg-O. Hasil penelitian menunjukkan terjadinya peningkatan luas permukaan keramik *foam* hingga mencapai $100 \text{ m}^2/\text{g}$. Namun, reaksi yang dilakukan pada suhu 1000°C tersebut dinilai kurang efektif dan membutuhkan energi yang sangat besar sehingga biaya produksinya sangat mahal. Sedangkan penelitian lain berupa penumbuhan *carbon nanofiber* (CNF) pada Ni *foam* melalui *Chemical Vapor Deposition* (CVD) dengan bantuan katalis nikel hanya mampu meningkatkan luas permukaan Ni *foam* dari $< 1 \text{ m}^2/\text{g}$ hingga mencapai $30 \text{ m}^2/\text{g}$ (Jarrah, 2006).

Dalam rangka meningkatkan kualitas produk katalis terstruktur berbasis *solid foam*, Wenmakers *et al.* (2008) melakukan penelitian awal menggunakan *foam* berbahan dasar lain, yaitu karbon. Penumbuhan CNF pada *carbon foam* melalui reaksi dekomposisi katalitik etilen dengan katalis nikel mampu meningkatkan luas permukaan *carbon foam* dari $0,12 \text{ m}^2/\text{g}$ hingga mencapai $146 \text{ m}^2/\text{g}$. Berangkat dari penelitian tersebut, berbagai penelitian lain mengenai penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* terus dikembangkan, mulai dari tahap preparasi, deposisi katalis, hingga reaksi penumbuhan nanokarbon. Hal tersebut bertujuan untuk meningkatkan kualitas produk komposit nanokarbon-*carbon foam* maupun untuk efisiensi proses.

Pada penelitian ini, penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dilakukan melalui reaksi dekomposisi katalitik metana dengan bantuan katalis nikel. Reaksi dekomposisi katalitik metana dipilih karena merupakan metode yang paling ekonomis untuk memproduksi nanokarbon. Metana sebagai bahan baku memiliki harga yang tidak terlalu tinggi dibandingkan dengan etilen atau asetilen yang biasa digunakan dalam CVD. Selain ekonomis, reaksi dekomposisi katalitik metana merupakan metode sintesis nanokarbon yang menjanjikan karena *yield* produk yang tinggi dan mudah dikontrol (Paramitha, 2009).

Sedangkan katalis nikel dipreparasi menggunakan metode presipitasi. Metode presipitasi dianggap sebagai metode preparasi yang terbaik untuk saat ini.

Proses deposisi inti aktif pada penyangga melalui metode presipitasi dapat mencapai *loading* yang tidak terbatas (Nasikin, 2010). Dengan waktu deposisi yang lebih lama, diharapkan dapat menghasilkan *loading* katalis yang lebih merata. *Loading* katalis yang merata diharapkan akan menghasilkan pertumbuhan nanokarbon yang merata pula. Produk *carbon foam* yang ditumbuhi nanokarbon secara merata dan dengan proses yang efisien diharapkan dapat menutupi kekurangan katalis konvensional yang banyak digunakan saat ini.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang yang telah dipaparkan di atas, maka rumusan masalahnya adalah bagaimana mendapatkan substrat katalis dari komposit nanokarbon-*carbon foam* yang lebih baik ditinjau dari dispersi nanokarbon yang tumbuh dan luas permukaan yang tinggi melalui reaksi dekomposisi katalitik metana dengan bantuan katalis nikel.

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Mendapatkan substrat katalis baru dari komposit nanokarbon-*carbon foam* dengan luas permukaan yang besar.
2. Mengetahui pengaruh waktu deposisi katalis yang dipreparasi dengan metode presipitasi terhadap *loading* katalis.
3. Mengetahui pengaruh *precipitating agent* pada deposisi nikel dengan metode presipitasi.

1.4 Batasan Masalah

Batasan pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Metode yang digunakan untuk penumbuhan nanokarbon adalah dekomposisi katalitik metana dengan menggunakan katalis nikel.
2. *Precursor* katalis nikel yang digunakan memiliki perbandingan awal 20 g Ni/g *carbon foam*.
3. Preparasi katalis nikel dilakukan dengan metode presipitasi
4. *Precipitating agent* yang digunakan adalah urea dan amoniak.

5. Variasi waktu deposisi menggunakan urea adalah 12 jam dan 24 jam.
6. Reaksi dekomposisi katalitik metana dilakukan pada temperatur 500°C dan tekanan atmosferik selama 5 jam dengan laju alir gas metana 20 ml/menit.
7. Penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dikarakterisasi menggunakan SEM dan luas permukaan spesifik *carbon foam* dikarakterisasi menggunakan BET.

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 katalitik heterogen, katalis terstruktur sebagai pengganti katalis konvensional, substrat katalis terstruktur dari komposit nanokarbon-*carbon foam*, produksi substrat katalis (reaksi dekomposisi katalitik metana), katalis pada reaksi dekomposisi katalitik metana, teknik preparasi dan deposisi katalis, serta metode karakterisasi.

BAB III Metodologi Penelitian

Berisi penjelasan mengenai prosedur penelitian secara umum, termasuk di dalamnya preparasi dan pelapisan katalis, karakterisasi katalis, *set-up* rangkaian peralatan, dan karakterisasi produk akhir.

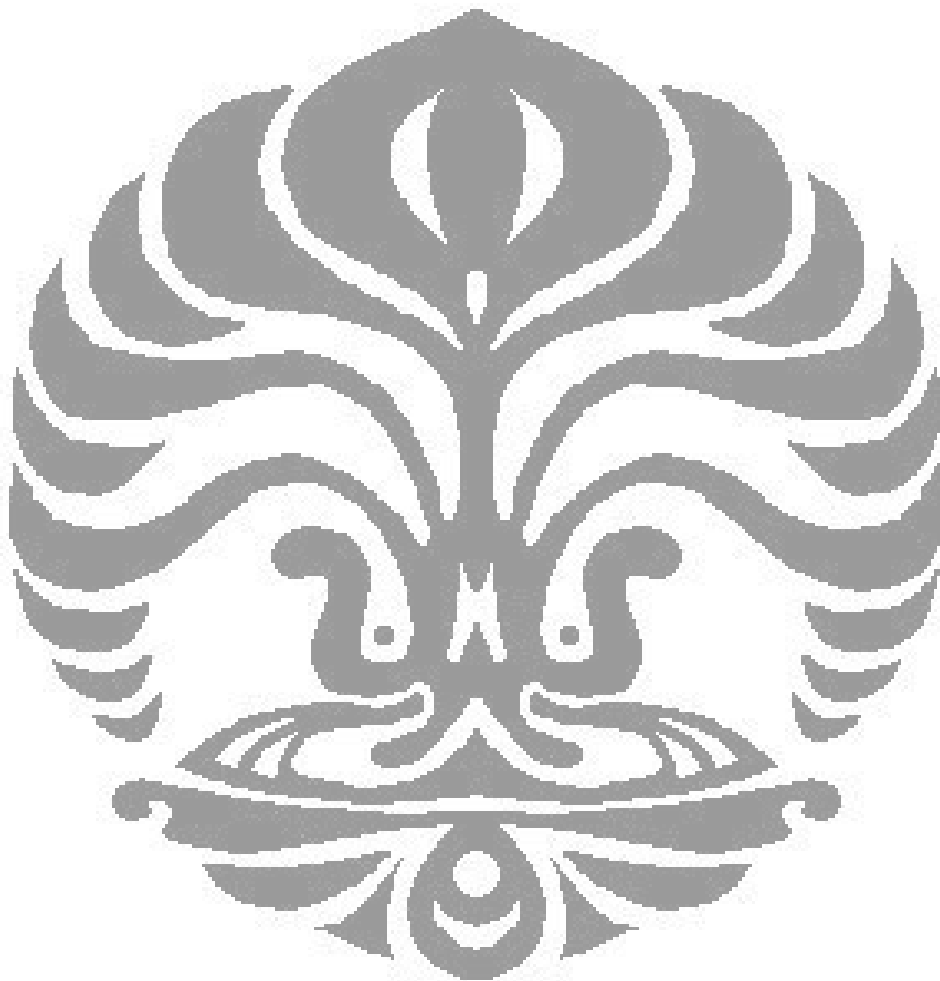
BAB IV Hasil dan Pembahasan

Berisi penjelasan mengenai hasil penelitian secara keseluruhan, mulai dari pengaruh waktu deposisi terhadap

loading katalis, serta pengaruh hasil penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam*.

BAB V Kesimpulan dan Saran

Berisi kesimpulan dari hasil penelitian serta saran untuk penelitian selanjutnya.



BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Reaksi Katalitik Heterogen

Berdasarkan fasa reaktan dan fasa katalis yang digunakan, reaksi katalitik dapat dibedakan menjadi reaksi katalitik homogen dan reaksi katalitik heterogen. Pada reaksi katalitik homogen, reaksi kimia terjadi pada fasa yang sama antara reaktan dan katalis, sedangkan pada reaksi katalitik heterogen, katalis memiliki fasa yang berbeda dengan reaktan. Dalam dunia industri, sistem katalisis heterogen lebih banyak digunakan karena memiliki beberapa keuntungan seperti yang diungkapkan oleh Nasikin sebagai berikut:

- a. Selektivitas terhadap produk yang diinginkan dapat diperoleh menggunakan sifat selektivitas bentuknya.
- b. Aktivitas intrinsik dari inti aktif dapat dimodifikasi oleh struktur padatnya.
- c. Komposisi permukaan dapat digunakan untuk meminimalisasi atau meningkatkan adsorpsi dari senyawa tertentu.
- d. Katalis mudah dipisahkan (tidak memerlukan tahap yang panjang) dari produk dengan filtrasi dan digunakan kembali dengan atau tanpa regenerasi.
- e. Mengurangi atau menghilangkan limbah (biasanya garam) yang biasa dihasilkan dari netralisasi katalis homogen asam Bronsted atau Lewis.

Katalis heterogen yang digunakan dalam industri merupakan katalis padat. Fasa padat memungkinkan katalis diproduksi dalam berbagai bentuk dan ukuran. Bentuk dan ukuran sangat mempengaruhi profil aliran fluida di dalam reaktor. Keberadaan katalis diharapkan dapat tetap menjaga keseragaman aliran fluida. Namun, bentuk katalis padat konvensional yang ada saat ini diketahui dapat menyebabkan aliran fluida yang tidak seragam di dalam reaktor.

Selain mempengaruhi keseragaman aliran fluida, katalis berbentuk padatan dapat menyebabkan hambatan terhadap aliran fluida sehingga menimbulkan *pressure drop* di dalam reaktor. *Pressure drop* yang tinggi dapat mengakibatkan peningkatan konsumsi energi, membutuhkan bahan kolom yang lebih tebal, serta menghasilkan gradien tekanan yang tidak diinginkan di dalam reaktor.

Dalam reaksi katalitik heterogen, peran katalis padat sangat ditentukan oleh sifat permukaannya. Sifat fisik katalis yang berhubungan dengan tekstur permukaan yang sangat berpengaruh terhadap kinerja katalis ialah luas permukaan, bentuk pori, dan distribusi ukuran pori. Permukaan katalis padat konvensional umumnya didominasi oleh kombinasi pori meso dan pori makro sekitar 95% (Nasikin, 2010), sehingga luas permukaannya tidak terlalu besar. Sedangkan mikropori biasanya ditemui pada zeolit, karbon aktif, maupun nanokarbon, yang ditunjukkan dengan luas permukaan yang tinggi.

2.2 Katalis Terstruktur sebagai Pengganti Katalis Padat Konvensional

Seperti yang dijelaskan sebelumnya bahwa katalis padat konvensional memiliki kekurangan utama yaitu *pressure drop* yang tinggi dan orientasi yang sangat tidak beraturan sehingga aliran fluida menjadi tidak seragam. Untuk mengatasi hal tersebut, saat ini banyak dikembangkan jenis katalis terstruktur untuk menggantikan katalis konvensional yang biasa digunakan dalam *fixed bed reactor*. Katalis terstruktur adalah katalis yang dibentuk dengan struktur tertentu. Kelebihan katalis terstruktur ini dibandingkan dengan katalis konvensional antara lain: aliran yang seragam, *pressure drop* yang rendah, distribusi katalis yang teratur, dan tidak sensitif terhadap *fouling* akibat debu.

Katalis terstruktur memiliki luas permukaan spesifik jauh yang lebih tinggi dibandingkan dengan katalis padat konvensional. Luas permukaan yang tinggi tersebut diperoleh akibat porositas yang tinggi pada katalis terstruktur. Sedangkan pada katalis konvensional, luas permukaan spesifik yang tinggi dapat diperoleh dengan mengurangi ukuran partikel katalis. Namun, semakin kecil ukuran partikel dapat menyebabkan *pressure drop* yang semakin besar sehingga reduksi ukuran partikel menjadi tidak efektif untuk meningkatkan kinerja katalis konvensional. Atas dasar tersebut, sistem katalis terstruktur menjadi sistem katalis yang menjanjikan untuk reaksi katalitik heterogen ke depannya.

Katalis terstruktur sendiri sebenarnya sudah banyak diaplikasikan untuk menangani berbagai masalah lingkungan. Sebagai contoh adalah *catalytic converter*, yaitu katalis yang digunakan pada kendaraan bermotor untuk mengendalikan emisi gas buang kendaraan. Katalis tersebut berupa logam Pt dan

Rh yang disangga pada keramik berbentuk monolitik. Keramik ini tertutupi lapisan setebal 30-50 mm yang terbuat dari $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ (70-85%) dan oksida lain seperti serium oksida (10-30%), lantanum oksida, atau barium oksida (Nasikin, 2010). Dengan menggunakan katalis ini, zat-zat beracun emisi gas kendaraan seperti CO_x dan NO_x dapat diubah menjadi senyawa yang kurang berbahaya.

Sedangkan jenis terbaru dari katalis terstruktur yang sedang dikembangkan adalah *solid foam*. *Solid foam* merupakan *open-celled* material yang memiliki porositas tinggi. Ukuran sel *solid foam* dinyatakan dalam *pores per linear inch* (PPI) dan dapat bervariasi antara 5 sampai 100 PPI, dengan porositas berkisar antara 80% sampai 97% (Wenmakers, 2008). *Solid foam* tersedia dalam berbagai jenis, antara lain keramik, logam, polimer, dan karbon.

2.3 Komposit Nanokarbon-Carbon Foam sebagai Substrat Katalis Terstruktur

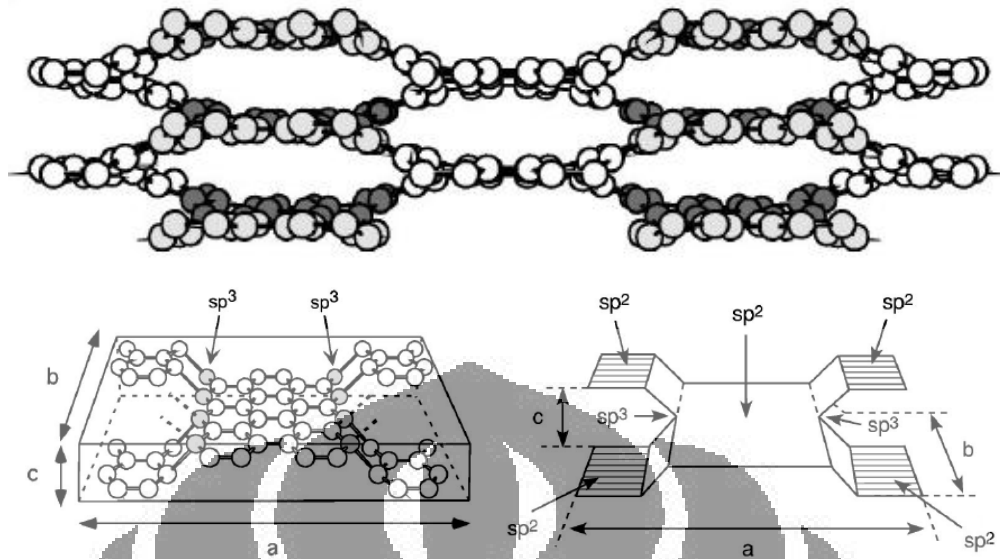
2.3.1 Carbon Foam

Carbon foam merupakan struktur *hybrid* yang terdiri dari ikatan-ikatan karbon sp^2 dan sp^3 (Tomašek, 2002; Umemoto, 2001). Setiap unit sel *carbon foam* terdiri atas 64 atom karbon yang terkoordinasi dalam ikatan-ikatan sp^2 dan sp^3 . Struktur kisi-kisi *carbon foam* per unit sel dapat dilihat pada gambar 2.1. Jenis karbon ini merupakan jenis struktur karbon baru yang dapat menyaingi kekuatan dan kekerasan intan dan grafit, kedua jenis alotrop karbon yang paling stabil. *Carbon foam* mampu mengkombinasikan kekuatan intan dengan porositas sehingga menghasilkan struktur terbuka (*open structure*) yang memiliki densitas massa yang rendah namun memiliki kestabilan yang lebih tinggi dibandingkan dengan grafit (Umemoto, 2001). Jika dibandingkan dengan intan dan grafit, posisi struktur baru *carbon foam* berada di antara keduanya. Perbandingan sifat ketiga jenis karbon tersebut dapat dilihat pada tabel 2.1.

Tabel 2.1 Perbandingan sifat elastis *carbon foam* terhadap intan dan grafit

	Struktur <i>foam</i>	Grafit	Intan
ρ	2,48 g/cm ³	2,27 g/cm ³	3,51 g/cm ³
C ₁₁ (sepanjang a axis)	9,02 Mbar	12,3 Mbar	11,29 Mbar
C ₂₂ (sepanjang b axis)	9,42 Mbar		
C ₃₃ (sepanjang c axis)	0,816 Mbar	0,34 Mbar	
Modulus Bulk	0,792 Mbar	0,326 Mbar	4,69 Mbar

(Tománek, 2002)



Gambar 2.1 Gambar perspektif 3D struktur kisi-kisi *carbon foam* per unit sel (Umemoto, 2001)

Pemilihan *carbon foam* sebagai substrat katalis didasari oleh keunggulan sifatnya yang memiliki porositas yang tinggi, luas permukaan geometri yang besar, densitas relatif yang sangat rendah (3%), bersifat inert, memiliki ketahanan terhadap patahan yang baik, dan dapat bertahan pada suhu yang sangat tinggi di lingkungan yang tidak mengoksidasi. Selain sebagai substrat katalis yang banyak digunakan dalam industri kimia, *carbon foam* juga dapat digunakan sebagai polutan *filter*. Prinsip kerjanya serupa dengan *honeycomb* yang digunakan pada kendaraan bermotor. *Honeycomb* sebagai *catalytic converter* dapat mengubah zat-zat beracun buangan kendaraan bermotor menjadi zat yang relatif aman. Begitu juga dengan *carbon foam*. *Carbon foam* dapat digunakan untuk mengeliminasi gas-gas berbahaya seperti karbon monoksida (CO), nitrogen oksida (NO_x), dan sulfur oksida (SO_x) yang biasa terdapat pada gas buang kendaraan maupun mesin-mesin industri.

Selain kedua fungsi utama di atas, *carbon foam* juga diketahui memiliki banyak kegunaan lain, seperti:

- **Elektroda**

Carbon foam dengan konfigurasi *open-cell* merupakan material yang ideal untuk konstruksi elektroda terdepan karena memiliki luas permukaan yang besar, konduktivitas elektrik yang tinggi, serta bersifat inert. Sebagai elektroda, *carbon foam* hanya perlu dilapisi dengan sejumlah bahan aktif

sehingga membentuk anoda atau katoda. Dengan menggunakan *carbon foam*, luas permukaan aktif elektroda menjadi jauh lebih besar.

- **Filter**

Carbon foam merupakan bahan yang bersifat inert, memiliki kapabilitas untuk digunakan pada temperatur tinggi, serta memiliki struktur *open-cell*. Oleh karena itu, *carbon foam* menjadi kandidat yang ideal untuk digunakan sebagai *filter* pada berbagai proses filtrasi yang cukup ekstrim, mulai dari filtrasi pelarut agresif, bahan-bahan kimia yang bersifat korosif, sampai filtrasi logam-logam yang dicairkan (*molten metal*).

- **Storage Battery**

Carbon foam dapat digunakan pada *high energy density battery*, seperti sodium/sulfur dan litium-alumunium/besi-disulfida baterai. Kemampuan *carbon foam* untuk mengurung material yang diinfusikan dapat meningkatkan performa baterai.

- **Fuel Cell**

Proton Exchange Membrane (PEM) fuel cell sedang dikembangkan dan diuji untuk transportasi dan berbagai aplikasi mesin-mesin *portable* lainnya. Salah satu tantangan utama dalam pengembangan PEM *fuel cell* ini adalah kebutuhan material untuk pelat bipolar (*bipolar plate*) dengan harga yang relatif murah. Pelat bipolar merupakan komponen utama pada *fuel stack cell* yang memiliki peranan penting dalam performa, ketahanan, serta biaya produksi *fuel cell*. Dibandingkan dengan teknologi pelat bipolar yang ada saat ini, penggunaan *carbon foam* dapat mengurangi biaya produksi.

2.3.2 Nanokarbon

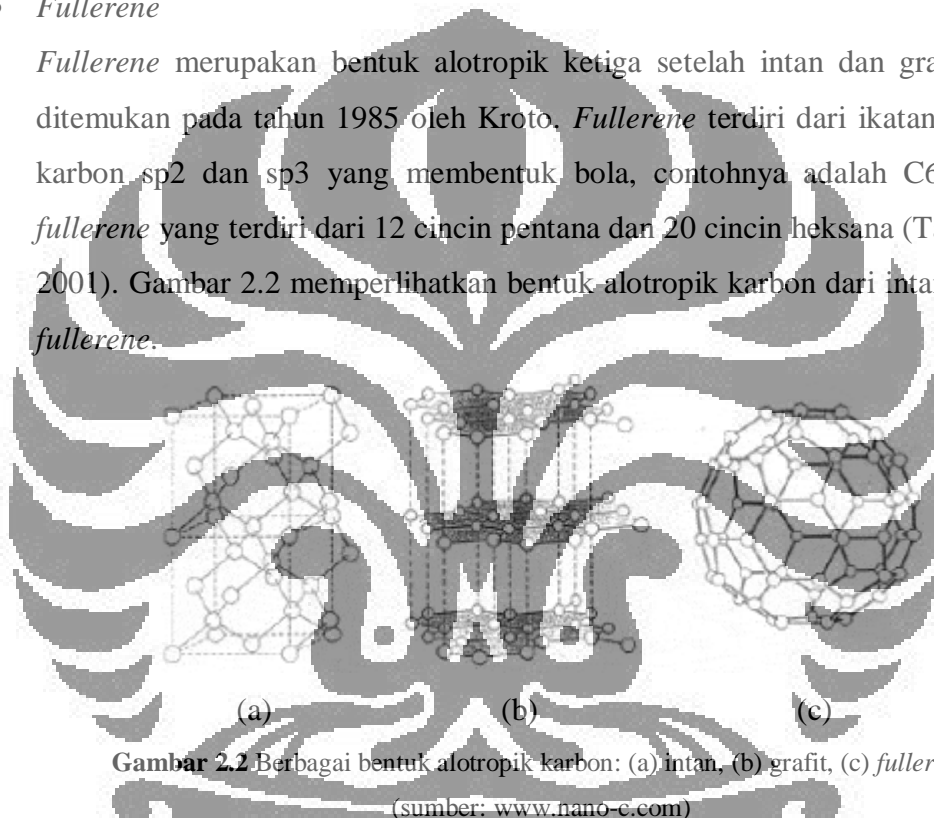
Nanokarbon didefinisikan sebagai material karbon yang bukan hanya ukuran partikelnya saja yang berukuran nanometer akan tetapi struktur dan teksturnya pun berukuran nanometer (Michio, 2004). Nanokarbon terbagi dalam lima bentuk dasar yang berbeda, yaitu: intan, grafit, *fullerenes*, nanofilamen dan *nanocones*.

- Intan dan Grafit

Intan dan grafit merupakan bentuk alotropik karbon yang pertama ditemukan sehingga menjadi bentuk yang paling dikenal. Intan memiliki karbon dengan empat ikatan sp^3 membentuk susunan tiga dimensi yang simetris dan tersusun rapat. Sedangkan grafit memiliki karbon dengan tiga ikatan sp^2 membentuk susunan dua dimensi berupa lembaran tersusun dari ikatan heksagonal atom-atom karbon sp^3 (Takenaka, 2001).

- *Fullerene*

Fullerene merupakan bentuk alotropik ketiga setelah intan dan grafit yang ditemukan pada tahun 1985 oleh Kroto. *Fullerene* terdiri dari ikatan karbon-karbon sp^2 dan sp^3 yang membentuk bola, contohnya adalah C_{60} , yaitu *fullerene* yang terdiri dari 12 cincin pentana dan 20 cincin heksana (Takenaka, 2001). Gambar 2.2 memperlihatkan bentuk alotropik karbon dari intan hingga *fullerene*.



- Nanofilamen

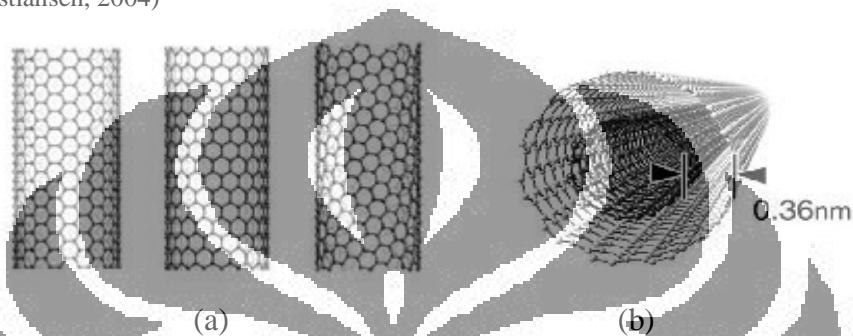
Karbon nanofilamen adalah nanokarbon yang berbentuk filamen-filamen. Secara umum, karbon nanofilamen terdiri dari *carbon nanofiber* (CNF) dan *carbon nanotubes* (CNT). CNT pertama kali ditemukan pada tahun 1991 oleh Sumio Iijima. CNT digambarkan sebagai *carbon nanofiber* yang memiliki lubang di bagian dalamnya sehingga menyerupai pipa (*tube*). Struktur CNT dapat dilihat pada gambar 2.3. CNT dan CNF merupakan bentuk karbon yang memiliki kekuatan yang sangat tinggi, bahkan CNT disebut sebagai material

yang paling kuat hingga saat ini (Kristiansen, 2004). Tabel 2.2 menunjukkan beberapa perbandingan sifat CNT, CNF, dan logam lainnya.

Tabel 2.2 Perbandingan sifat karbon nanofilamen dan logam

Material	Young Modulus (<i>stiffness</i>)	Tensile Strength (<i>breaking stress</i>)	Density
<i>Carbon nanotubes</i>	1250 Gpa	11-63 Gpa	1.3-1.4 g/cm ³
<i>Carbon nanofibers</i>	425 Gpa (max.)	3.5-6 Gpa	-
<i>High strength steel</i>	200 Gpa	~ 2 Gpa	-
Aluminium	-	-	2.7 g/cm ³

(Kristiansen, 2004)

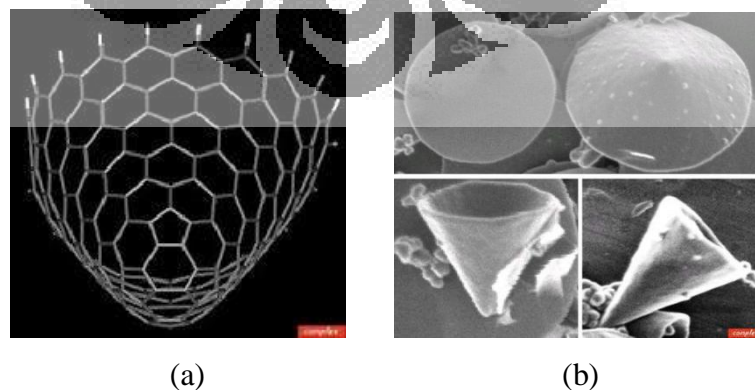


Gambar 2.3 (a) *Single Walled Carbon Nanotube* (b) *Multi-Walled carbon Nanotube*

(Paramitha, 2009)

- *Carbon cones*

Carbon cones pertama kali ditemukan pada tahun 1997 oleh Ebbesen. *Carbon cones* memiliki struktur berbentuk kerucut sempurna yang berbeda dari bentuk material karbon yang pernah ada sebelumnya. Struktur tersebut dapat dilihat pada gambar 2.4. Sifat mekanik, kimia, maupun elektrik dari karbon tersebut berbeda dari karbon-karbon sebelumnya. Hal tersebut membuka peluang untuk aplikasi nanokarbon yang lebih luas. Berbagai penelitian sedang dikembangkan untuk mengetahui hal tersebut.



Gambar 2.4 (a) Struktur *carbon cone* (b) Hasil SEM *carbon cone*

(sumber: www.complexphysics.org)

Berdasarkan penjelasan di atas, nanokarbon jenis filamen merupakan material yang menjanjikan untuk sistem katalis terstruktur ini, karena memiliki luas permukaan yang besar, mencapai 1315 m²/g untuk jenis *single-walled carbon nanotube* (Cordier, 2005), volume pori yang besar yaitu sekitar 0,5-2 cm³/g (Chinthaginjala, 2007), serta kekuatan mekanik yang tinggi (dapat dilihat pada tabel 2.2). Atas dasar tersebut, berbagai penelitian mengenai komposit nanokarbon-*carbon foam* terfokus pada jenis nanokarbon yang berbentuk filamen, baik CNT maupun CNF.

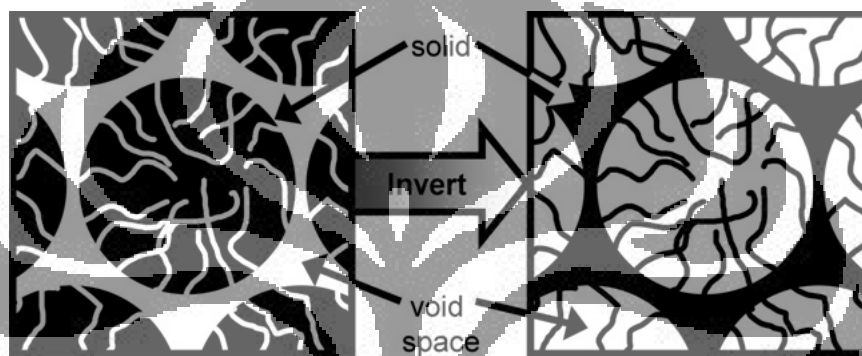
2.3.3 Komposit Nanokarbon-Carbon Foam

Berbagai penelitian telah dilakukan dalam upaya peningkatan kualitas suatu substrat katalis terstruktur melalui penumbuhan nanokarbon pada substrat tersebut. Tabel 2.3 memperlihatkan berbagai produk komposit nanokarbon lengkap dengan metode penumbuhan, katalis yang digunakan, serta kualitas komposit yang dihasilkan berdasarkan luas permukaannya. Pada penelitian ini, akan dilakukan penumbuhan nanokarbon pada substrat *carbon foam* melalui reaksi dekomposisi katalitik metana dengan bantuan katalis nikel.

Tabel 2.3 *State of the art* penumbuhan nanokarbon pada berbagai jenis substrat katalis terstruktur

Peneliti	Jenis substrat	Kondisi penumbuhan nanokarbon	Katalis	Luas permukaan, m ² /g	
				Sebelum penumbuhan nanokarbon	Setelah penumbuhan nanokarbon
Jarrah, 2003	γ -Al ₂ O ₃ coated monolith	C-source: 50% CH ₄ / 10% H ₂ /N ₂ T: 570°C Flowrate: 200 ml/menit	Ni	45	63
Vieira, 2004	Graphite felt	C-source: H ₂ /C ₂ H ₆ (5:1) T: 680°C Flowrate: 120 ml/menit	Ni	< 1	90
De Lathouder, 2005	SiO ₂ coated monolith	C-source: CH ₄ in N ₂ T: - Flowrate: -	Ni	-	26
Tribolet, 2005	Metal fiber	C-source: 3% C ₂ H ₆ / 17% H ₂ /Ar T: 655°C Flowrate: 600 ml/menit	Ni	-	22
Ismagilov, 2005	Silica glass fiber	C-source: 25% CH ₄ / N ₂ T: 550°C Flowrate: 107 ml/menit	Ni	< 1	19
Jarrah, 2006	Ni foam	C-source: 25% C ₂ H ₄ / N ₂ T: 450°C Flowrate: 107 ml/menit	Ni	< 1	30
Wenmakers, 2006	Carbon foam	C-source: 20% C ₂ H ₄ / 7% H ₂ /N ₂ T: 500°C Flowrate: 100 ml/menit	Ni	0,12	146

Luas permukaan *interfacial carbon foam* relatif tinggi untuk perpindahan massa. Namun, kurangnya jumlah mikropori pada *carbon foam* menyebabkan rendahnya luas permukaan yang tersedia untuk deposisi katalis. Luas permukaan *carbon foam* diketahui kurang dari $10 \text{ m}^2/\text{g}$ (Wenmakers, 2008). Luas permukaan *carbon foam* tersebut dapat ditingkatkan dengan menumbuhkan nanokarbon pada permukaan *carbon foam*. Komposit nanokarbon dan *carbon foam* secara visual menyerupai kebalikan dari partikel-partikel katalis konvensional yang berbentuk padatan bola.



Gambar 2.5 Inversi katalis *packed bed* berpori ke dalam *solid foam* yang ditumbuhi nanokarbon (warna hitam menunjukkan solid, warna putih menunjukkan ruang kosong) (Wenmakers, 2008)

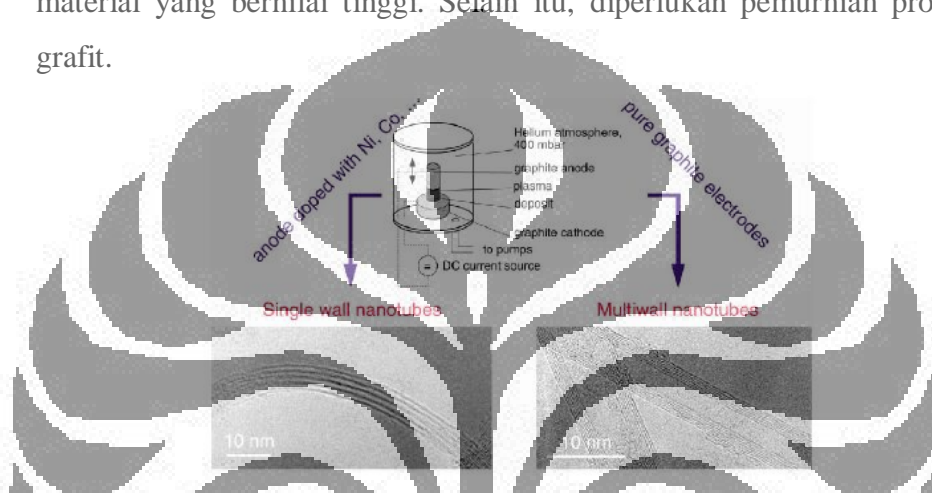
Bagian padat dan ruang kosong pada partikel-partikel bulat katalis konvensional diinversi sehingga menghasilkan *open structure* dengan luas permukaan eksternal yang jauh lebih besar. Jika sebelumnya inti aktif katalis hanya dapat dideposisikan pada pori-pori *carbon foam*, kini inti aktif tersebut dapat dideposisikan pada permukaan luar nanokarbon. Selain itu, struktur terbuka (*open structure*) dari nanokarbon dapat mengurangi tahanan difusi serta meningkatkan kontak antara fluida yang mengalir dengan substrat.

2.4 Pembuatan Komposit Nanokarbon-Carbon Foam

Penumbuhan nanokarbon dapat dilakukan melalui berbagai cara dengan menggunakan berbagai jenis reaksi dan reaktan, serta berbagai jenis katalis dan metode preparasinya. Beberapa metode yang telah banyak digunakan untuk penumbuhan nanokarbon yaitu:

a. *Arch-Discharge*

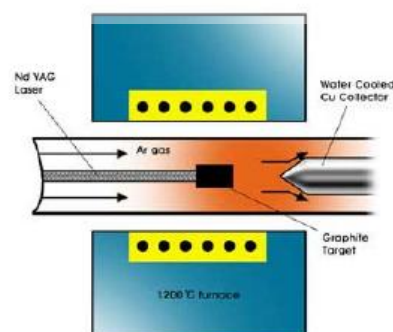
Metode ini merupakan metode yang paling sederhana dibandingkan dengan metode lainnya. Sintesis nanokarbon melalui proses yang cukup singkat, yaitu mengalirkan arus listrik searah melewati elektrode grafit di dalam vesel yang berisi gas argon atau gas *inert* lainnya (Gambar 2.6). Pada proses ini karbon nanotube tumbuh pada bagian elektroda negatif (anoda). Meskipun sederhana, metode ini tidak bernilai ekonomis karena grafit yang digunakan merupakan material yang bernilai tinggi. Selain itu, diperlukan pemurnian produk dari grafit.



Gambar 2.6 Skema *arch-discharge*. Dua elektrode grafit digunakan untuk memproduksi arus listrik searah *arch-discharge* dalam atmosfer gas *inert* (Daenan, 2003)

b. *Laser Ablation*

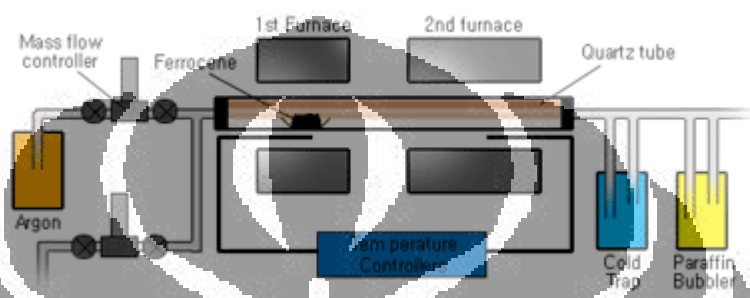
Metode ini diperkenalkan oleh Smalley *et al.* pada tahun 1996 dan dihasilkan *single walled carbon nanotubes* berdiameter 5-20 nm dalam bentuk *bundle*. Metode *laser ablation* ini merupakan penguapan batang grafit dengan Ni dan Co pada suhu 1200°C (Gambar 2.7). Suhu yang terlalu tinggi membutuhkan energi yang besar sehingga dinilai tidak efektif.



Gambar 2.7 Skema *Laser Ablation* (Daenan, 2003)

c. *Chemical Vapor Deposition (CVD)*

Proses CVD merupakan reaksi dekomposisi katalitik hidrokarbon (biasanya etilen atau asetilen) di dalam reaktor berbentuk *tube* pada temperatur 550-750°C, yang diikuti pertumbuhan karbon *nanotube* di permukaan katalis pada sistem pendinginan (Gambar 2.8). Penggunaan etilen maupun asetilen dinilai kurang ekonomis karena kedua senyawa tersebut merupakan produk kimia yang banyak digunakan dalam industri dan bernilai ekonomi tinggi.



Gambar 2.8 Skema proses CVD (Daenan, 2003)

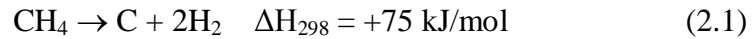
d. Dekomposisi Katalitik Metana

Reaksi dekomposisi metana merupakan proses sintesis nanokarbon yang paling ekonomis di antara metode lainnya. Selain ekonomis, reaksi dekomposisi katalitik metana merupakan metode sintesis nanokarbon yang menjanjikan karena *yield* produk yang tinggi dan mudah dikontrol (Paramitha, 2009).

2.5 Mekanisme Pertumbuhan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

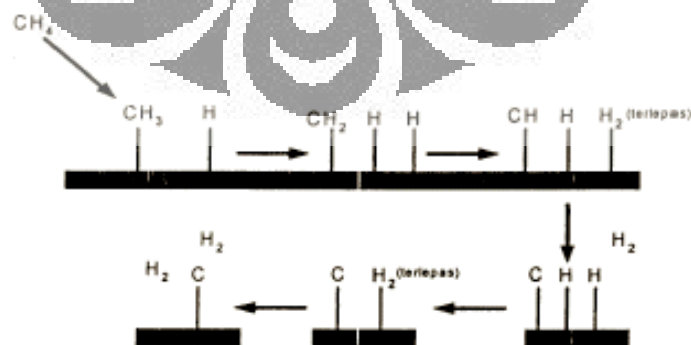
Dekomposisi didefinisikan sebagai salah satu dari reaksi kimia yang menguraikan atau memutuskan ikatan rantai suatu senyawa menjadi unsur-unsur atau senyawa yang lebih sederhana. Definisi ini memiliki arti yang sama dengan perengkahan (*cracking*). Salah satu contohnya adalah dekomposisi metana (hidrokarbon 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 adalah 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) dapat dilihat pada persamaan 2.1 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.

Pada reaksi dekomposisi metana, sebuah molekul metana direngkah (*cracking*) menjadi sebuah molekul karbon dan dua buah molekul hidrogen. Gambar 2.9 menunjukkan mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana. Atom hidrogen terputus satu per satu membentuk ion karbonium. Pada akhirnya didapatkan sebuah molekul atom karbon dan dua molekul hidrogen di akhir reaksi.



Gambar 2.9 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana (Yulianti, 2008)

Salah satu teori mekanisme pertumbuhan nanokarbon, menyebutkan bahwa mekanisme perbumbuhan nanokarbon dipengaruhi oleh laju pembentukan lapisan karbon terhadap laju pergerakan metal. Dalam teori itu, Safronov dan Kovaleski 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*. *Carbon nanotube* baru diperoleh bila laju pembentukan lapisan karbon dan laju pergerakan logam sama (Chen, 2001).

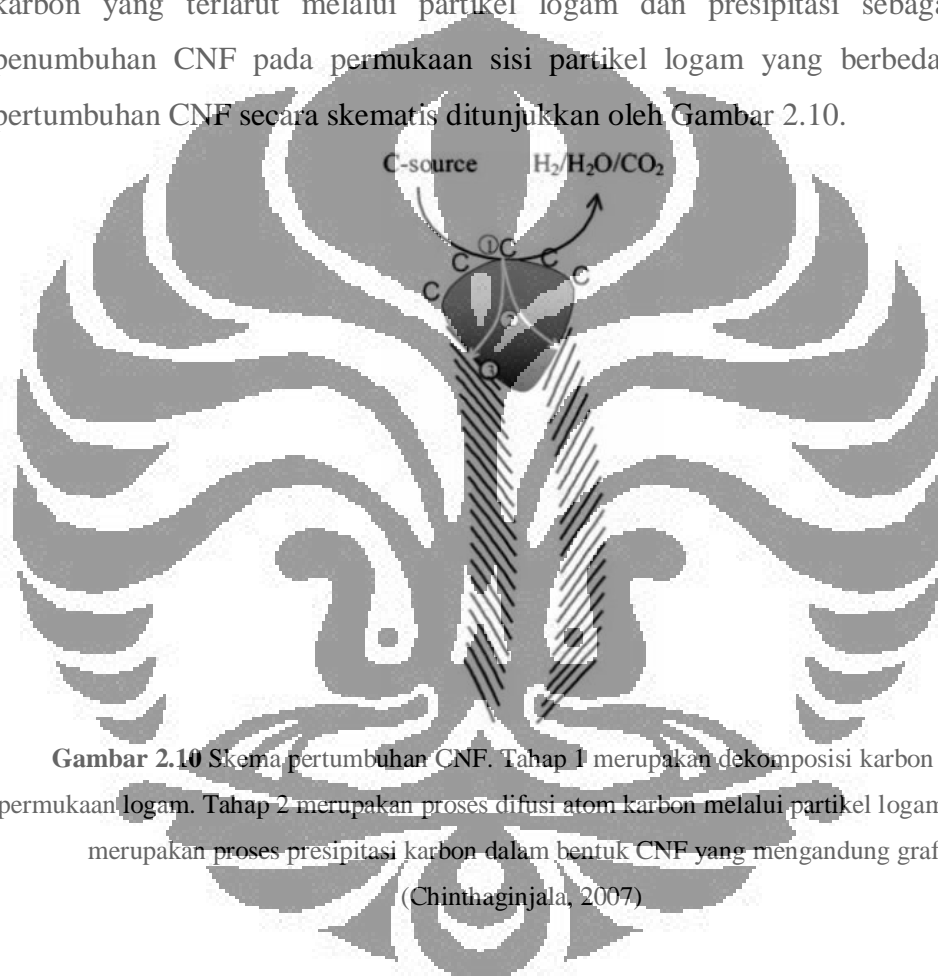
Teori mekanisme pertumbuhan oleh Chen menyatakan bahwa laju pembentukan karbon dan laju pergerakan katalis dipengaruhi oleh keadaan katalis pada saat reaksi terjadi dan juga oleh komposisi umpan. Karbon *bamboo-shaped* baru terbentuk bila partikel logam berada dalam keadaan *quasi-liquid*, yaitu keadaan 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.

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. Bentuk nanokarbon yang dihasilkan ini dinamakan nanofiber.

Proses pembentukan karbon nanofiber melibatkan beberapa tahap, yaitu: (i) dekomposisi gas sumber karbon pada permukaan partikel logam yang terekspos, (ii) pelarutan atom carbon di dalam partikel logam, dan (iii) difusi karbon yang terlarut melalui partikel logam dan presipitasi sebagai tanda penumbuhan CNF pada permukaan sisi partikel logam yang berbeda. Proses pertumbuhan CNF secara skematis ditunjukkan oleh Gambar 2.10.



Gambar 2.10 Skema pertumbuhan CNF. Tahap 1 merupakan dekomposisi karbon pada permukaan logam. Tahap 2 merupakan proses difusi atom karbon melalui partikel logam. Tahap 3 merupakan proses presipitasi karbon dalam bentuk CNF yang mengandung grafit (Chinthaginjala, 2007)

Namun hingga saat ini masih menjadi perdebatan mengenai *driving force* yang dapat menyebabkan atom karbon terdifusi pada salah satu sisi dan keluar sebagai CNF pada sisi yang lain. Baker *et al.* berpendapat bahwa gradien suhu pada partikel logam merupakan salah satu penyebabnya. Hal tersebut dikarenakan gradien suhu yang terjadi karena perbedaan sifat termokimia dari dekomposisi hidrokarbon versus pembentukan CNF menyebabkan presipitasi karbon yang berlebih terjadi pada zona yang lebih dingin.

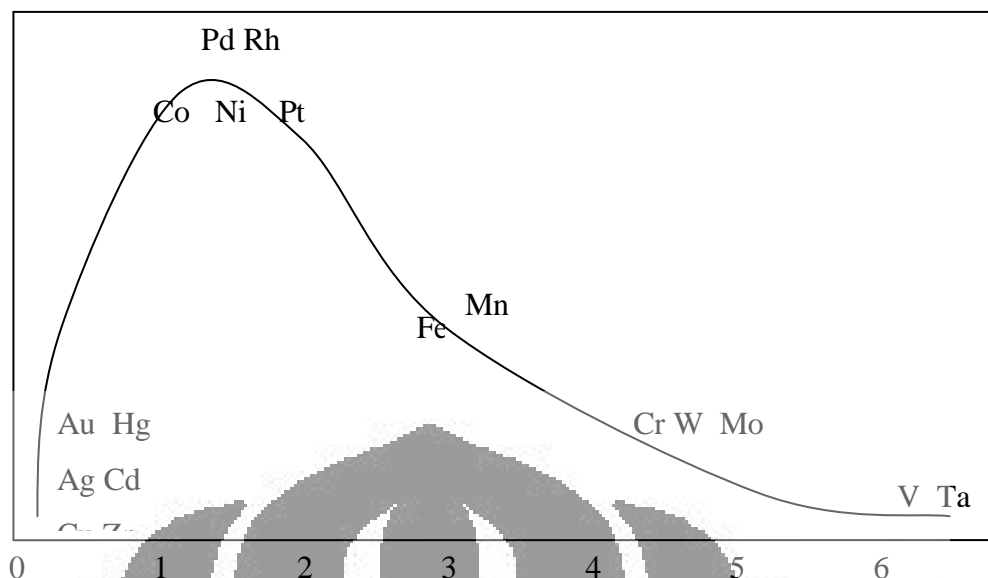
2.6 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Penambahan katalis dalam reaksi dekomposisi metana memungkinkan tercapainya konversi yang maksimum pada temperatur yang lebih rendah, karena reaksi dekomposisi metana bersifat endotermis. Hal ini berpengaruh terhadap banyaknya *yield* produk yang dihasilkan. Selain berpengaruh terhadap kuantitas, katalis juga berperan dalam hal kualitas nanokarbon.

Katalis yang efisien untuk reaksi ini adalah yang paling tahan terhadap adanya akumulasi karbon dalam jumlah besar sesuai dengan konversi metana yang bersangkutan. Saat ini, katalis yang paling banyak digunakan sebagai inti aktif dalam dekomposisi metana ini berasal dari logam transisi golongan VIII. Tetapi, tidak semua logam tersebut menunjukkan aktivitas yang baik untuk proses dekomposisi metana. Hal ini dapat dijelaskan dengan kurva *volcano* yang menggambarkan kekuatan dehidrogenasi logam golongan transisi seperti terlihat pada Gambar 2.11.

Kurva *volcano* menunjukkan hubungan antara orbital *d* kosong terhadap aktivitas katalis. Setelah menganalisis aktivitas berdasarkan orbital elektronnya, terdapat beberapa hal lain yang harus diperhatikan, seperti: termodinamika reaksi, geometri, selektivitas, dan faktor keracunan katalis. Secara detail, sifat katalis yang aktif dalam reaksi hidrogenasi-dehidrogenasi memiliki karakter sebagai berikut:

- 1) Katalis harus mampu membentuk ikatan kimia dengan satu atau kedua reaktan (*chemisorption*) tetapi ikatan tersebut harus tidak terlalu kuat dan tidak terlalu lemah sehingga produk reaksi masih bisa terdesorpsi.
- 2) Kekuatan ikatan dengan hidrogen meningkat seiring dengan peningkatan jumlah kekosongan orbital *d*. Sesuai persyaratan pada butir 1, aktivitas katalis mencapai nilai maksimum apabila logam memiliki hanya satu orbital *d* kosong. Dengan demikian, logam Co, Ni, Rh, Pd, Ir, dan Pt merupakan logam yang paling aktif untuk reaksi hidrogenasi-dehidrogenasi.
- 3) Sifat katalis dan daya adsorpsi dari logam pada butir 2 dapat diestimasi dari rata-rata jumlah orbital *d* yang kosong. Orbital kosong juga dapat terisi oleh unsur lain sehingga suatu logam dapat berkurang jumlah orbital kosongnya.



Gambar 2.11 Hubungan antara orbital d kosong dengan aktivitas katalis pada reaksi dehidrogenasi etilen (kurva Volcano)

Dalam kurva tersebut dapat dilihat bahwa logam Pd dan Rh terletak di atas kurva yang berarti kekuatannya tinggi. Karena dari aspek harga logam tersebut mahal, maka katalis yang digunakan dalam proses dekomposisi metana adalah katalis yang berbasis Ni. Nikel sering digunakan sebagai inti aktif, karena memiliki kelebihan dari logam lain (seperti Fe dan Co) sebagai berikut (Ermakova, 2000):

1. Logam aktif yang biasanya paling banyak digunakan
2. Memiliki aktivitas yang relatif tinggi dibanding logam lainnya (Co dan Fe)
3. Memiliki kapasitas ukuran pori yang relatif tinggi untuk pertumbuhan karbon
4. Yield karbon yang dihasilkan relatif tinggi dibanding logam lainnya (Co dan Fe)
5. Memiliki *toxicity* relatif rendah
6. Harga relatif murah

Katalis yang digunakan untuk reaksi ini harus mampu memutus ikatan C-H yang terdapat dalam metana sehingga produk yang diinginkan dapat terbentuk. Kekuatan pemutusannya harus tinggi karena metana bersifat stabil dan sulit untuk diputuskan ikatannya. *Cracking* dapat terjadi melalui mekanisme reaksi radikal bebas pada temperatur tinggi dan dapat dipercepat dengan penggunaan katalis yang bersifat non-asam. Tetapi aktivitas terbaik diperoleh dengan penggunaan katalis yang bersifat asam dimana katalis tersebut mampu melakukan transfer proton yang amat berguna dalam penata-ulangan ion karbonium.

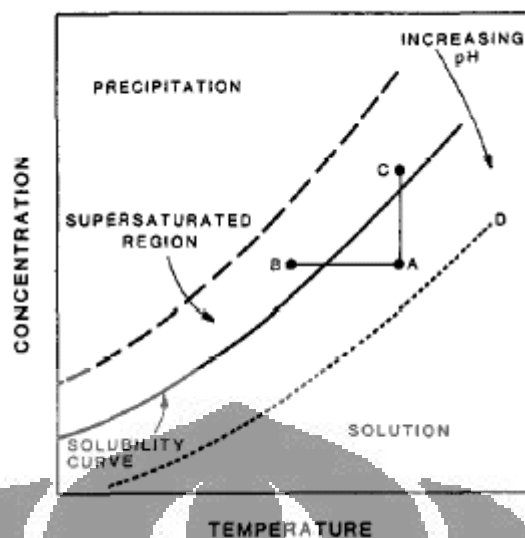
2.7 Preparasi Katalis melalui Metode Presipitasi

Preparasi katalis bertujuan untuk menciptakan katalis yang secara teoritis telah sesuai dengan reaksi yang dikehendaki. Metode preparasi katalis berpengaruh pada aktivitas suatu katalis karena metode yang digunakan akan mempengaruhi karakteristik partikel katalis yang dihasilkan, seperti luas permukaan kontak, diameter partikel katalis, dispersi, *loading* inti aktif dan sebagainya. Metode preparasi yang paling sering digunakan pada dekomposisi katalitik metana adalah impregnasi, presipitasi, dan sol-gel. Pada penelitian ini akan digunakan metode presipitasi, karena metode ini memungkinkan *loading* logam dalam jumlah yang lebih besar daripada metode lainnya.

Metode presipitasi dilakukan dengan mengendapkan suatu padatan pada suatu larutan, baik sebagai endapan maupun sebagai gel. Endapan maupun gel yang terbentuk ini merupakan prekursor yang akan menentukan struktur dan sifat katalis. Tujuan yang ingin dicapai adalah untuk mencapai reaksi antara sumber inti aktif dan penyangga seperti reaksi yang dijelaskan pada Persamaan 2.2 (Nasikin, 2010). Larutan garam dapat berbentuk larutan yang merupakan senyawa logam oksalat, nitrat, sulfat, atau klorida. Pada metode ini digunakan *precipitating agent* yang dapat ditambahkan dalam bentuk larutan atau gas, di mana penambahan dalam bentuk larutan dilakukan dengan metode titrasi, sedangkan penambahan dalam bentuk gas dilakukan dengan metode injeksi.



Presipitasi suatu padatan, dapat dibagi menjadi tiga tahap, yaitu penjenuhan (*supersaturation*), pembentukan inti (*nucleation*), dan pertumbuhan (*growth*). Seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 2.12, kurva kelarutan merupakan fungsi suhu dan pH. Titik kejenuhan bisa dicapai dengan menambah konsentrasi dari larutan (memindahkan titik A ke C) atau dengan menurunkan temperatur dari sistem (dari titik A ke B). Selain itu bisa pula dengan menaikkan pH dari larutan, sehingga kurva kelarutan bergeser dan titik A berada pada daerah lewat jenuh. Partikel yang sudah berada di daerah lewat jenuh berkembang dalam dua tahap, nukleasi dan pertumbuhan. Proses perkembangan sangat tergantung dari konsentrasi, temperatur, pH, dan kematangan dari larutan tersebut.



Gambar 2.12 Hubungan antara kelarutan terhadap konsentrasi dan temperatur dalam proses pengendapan (Richardson, 1989)

Precipitating agent yang digunakan adalah urea dan amonia karena kelarutannya rendah, mudah terdekomposisi, dan juga tingkat toksisitasnya rendah. Tahap awal metode ini diawali dengan pemberian *precipitating agent* yang menyebabkan pengendapan, kemudian diikuti beberapa tahap lainnya, yaitu filtrasi, pencucian, pengeringan, dan kalsinasi.

Secara umum, ada beberapa keuntungan dari metode presipitasi, yaitu:

1. Menghasilkan campuran yang lebih merata pada skala molekular terhadap variasi unsur katalis.
2. Distribusi inti aktif katalis merata.
3. Ukuran dan bentuk katalis tidak dibatasi untuk menjadi bentuk yang diinginkan penyangga.

2.8 Metode Karakterisasi

Pada penelitian ini, dilakukan karakterisasi untuk mengetahui luas permukaan *carbon foam* serta morfologi *carbon foam* yang telah ditumbuhi nanokarbon.

2.8.1 BET

Luas permukaan merupakan sifat yang penting dalam aplikasi katalis. Isitilah tekstur (pola) merujuk pada struktur pori partikel secara umum meliputi luas permukaan, distribusi ukuran pori, dan bentuk pori. Dari beberapa sifat yang

berkaitan dengan tekstur tersebut, luas permukaan (*surface area*, S_g , m^2/g) merupakan parameter yang paling penting dalam merancang katalis heterogen. Luas permukaan total merupakan kriteria penting untuk katalis padat karena sangat menentukan jumlah situs aktif di dalam katalis, yang nantinya berkaitan dengan aktivitas katalis (Nasikin, 2010).

Pengukuran luas permukaan dapat menggunakan teknik adsorpsi BET. Metode BET dipublikasikan oleh *Brunauer, Emmet dan Teller* pada tahun 1938 yang lebih dikenal dengan metode model adsorpsi fisik gas dalam padatan, yang menggunakan prinsip gaya *Van der Waals*. Metode BET berdasarkan model yang sangat sederhana dan hanya menggambarkan sebagian kecil adsorpsi isothermal yang digunakan untuk menentukan luas permukaan spesifik dari padatan. Metode ini biasanya digunakan untuk padatan yang tidak berpori, makropori, dan mesopori.

Metode BET dapat digunakan untuk gas yang mudah terkondensasi, tetapi umumnya digunakan gas dengan ukuran molekul kecil seperti nitrogen, gas kripton, argon ataupun karbondioksida dapat pula digunakan sebagai gas adsorbat. Namun, persamaan BET yang digunakan untuk mengevaluasi proses adsorpsi pada permukaan adsorben hanya dapat berlaku sampai pada nilai $P/P_0 \leq 0,3$. Hal ini disebabkan karena pada tekanan yang lebih tinggi akan terjadi kondensasi liquid pada ukuran pori mikro dan akan menjadi pori meso pada rasio P/P_0 yang mendekati 1.

2.8.2 *Scanning Electron Microscopy* (SEM)

Informasi tentang morfologi permukaan substrat katalis sangat diperlukan untuk melengkapi pengetahuan tentang semua komponen yang ada dalam katalis. Bentuk dan ukuran adalah dua bagian yang paling penting dalam morfologi. Sedangkan hal lain yang perlu diperhatikan adalah distribusi dan ukuran kristalin. *Electron Microscopy* (EM) adalah salah satu teknik yang digunakan untuk melihat morfologi suatu material. Pada metode ini, permukaan yang akan diuji di-*scan* dengan pancaran berkas elektron dan pantulan elektron ditangkap yang kemudian ditampilkan diatas tabung sinar katoda. Bayangan yang tampak diatas *layer* menampilkan gambaran permukaan spesimen.

Dua teknik utama EM dibedakan menjadi *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan *Transmission Electron Microscopy* (TEM). SEM merupakan salah satu teknik untuk melakukan karakterisasi material komposit dengan batas resolusi mikroskopi elektron 10 nm. Sedangkan analisis menggunakan TEM memiliki kelebihan karena resolusinya lebih tinggi. Namun, pada penelitian ini hanya digunakan SEM. SEM membaca suatu permukaan sampel dengan suatu alat pembaca elektron (5-50 kV). Pembesaran 20 hingga 50.000 kali mungkin dilakukan dengan resolusi sebesar 5 nm. Suatu area dengan kedalaman yang besar dan struktur yang sangat tidak teratur dapat diketahui dengan efek 3D. Namun, keterbatasan resolusi membuat alat ini terbatas bagi kristal yang berukuran kurang dari 5 nm. Di atas level ini, bentuk, ukuran, dan distribusi ukuran mudah untuk dilakukan.

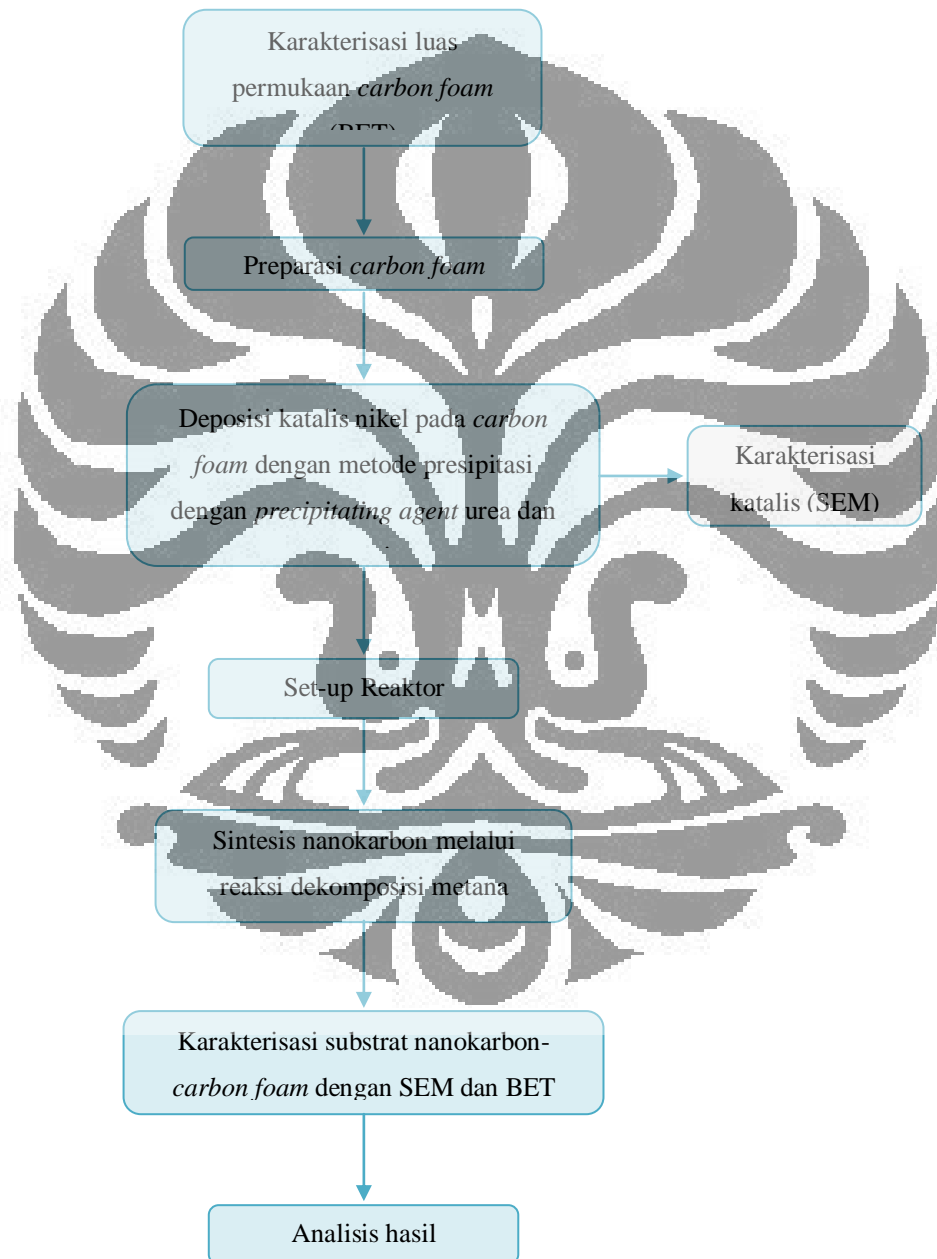


BAB 3

METODE PENELITIAN

3.1 Diagram Penelitian

Penelitian dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dan Bahan Alam, Departemen Teknik Kimia, Universitas Indonesia. Penelitian dilakukan sesuai diagram alir yang dapat dilihat pada gambar 3.1 sebagai berikut.



Gambar 3.1 Diagram Alir Penelitian

3.2 Prosedur Penelitian

Penelitian dimulai dengan melakukan karakterisasi awal terhadap luas permukaan *carbon foam* menggunakan BET. Kemudian masuk pada tahap preparasi *carbon foam* dan katalis nikel yang digunakan untuk reaksi dekomposisi metana. Setelah itu, dilanjutkan dengan deposisi katalis nikel pada *carbon foam*, kemudian dilakukan karakterisasi SEM terhadap hasil deposisi tersebut.

Tahap penelitian selanjutnya adalah *set up* reaktor yang terdiri atas kalibrasi laju alir gas dan temperatur *furnace*, serta data akuisisi. Kalibrasi laju alir dan data akuisisi tersebut dilakukan untuk memastikan bahwa kondisi operasi akan sesuai dengan kondisi operasi yang diinginkan. Sedangkan kalibrasi temperatur *furnace* bertujuan untuk mengetahui posisi sampel yang sesuai untuk mendapatkan panas yang diinginkan.

Setelah reaktor siap digunakan, tahap selanjutnya adalah penumbuhan nanokarbon melalui reaksi dekomposisi katalitik metana. Reaksi ini dilakukan pada temperatur 500°C. Setelah selesai direaksikan, produk akhir *carbon foam* tersebut dikarakterisasi menggunakan SEM dan BET.

3.2.1 Preparasi Carbon Foam

Preparasi *carbon foam* dilakukan dengan prosedur sebagai berikut.

- 1) Melakukan karakterisasi awal terhadap luas permukaan *carbon foam* menggunakan BET.
- 2) Memotong *carbon foam* hingga sesuai dengan ukuran reaktor (Gambar 3.2), dan menimbang berat *carbon foam* yang sudah dipotong tersebut.
- 3) Mengoksidasi *carbon foam* menggunakan asam nitrat selama kurang lebih 60 menit.
- 4) Mencuci *carbon foam* menggunakan *demineralized water* dan merendamnya di dalam *demin water* sebelum digunakan.

3.2.2 Deposisi Katalis

Deposisi katalis nikel pada *carbon foam* menggunakan metode presipitasi dengan *precipitating agent* berupa urea dan amonia. Oleh karena itu, prosedur

untuk deposisi katalis ini dibedakan menjadi dua berdasarkan *precipitating agent* yang digunakan.

- **Deposisi Menggunakan Urea**

- 1) Menimbang bahan katalis yang berupa nikel nitrat hexahidrat dengan perbandingan berat prekursor nikel terhadap berat *carbon foam* 20 g Ni/g *carbon foam*.
- 2) Melarutkan bahan tersebut dalam *demin water* dan memanaskan hingga mencapai temperatur 90°C.
- 3) Mengatur pH larutan menjadi 3,5 dengan cara menambahkan sedikit asam nitrat (temperatur dijaga tetap 90°C).
- 4) Menambahkan urea sedikit demi sedikit sambil tetap diaduk, dimana jumlah urea yang ditambahkan mengikuti perbandingan mol berdasarkan penelitian sebelumnya (Wenmakers, 2008) yaitu 1 : 3 (mol nikel : mol urea).
- 5) Setelah penambahan urea selesai, larutan diangkat dari pemanas.
- 6) Memasukkan *carbon foam* ke dalam larutan nikel nitrat.
- 7) Merendam *carbon foam* dalam larutan dengan variasi waktu perendaman selama 12 jam dan 24 jam.
- 8) Setelah selesai, *carbon foam* dikeluarkan dari larutan dan dibilas dengan *demin water*.
- 9) Mengeringkan *carbon foam* dengan memanaskan pada temperatur 100°C selama semalaman.
- 10) Menimbang kembali berat *carbon foam*.
- 11) Melakukan karakterisasi SEM untuk melihat morfologi *carbon foam* yang sudah dideposisi katalis Ni.

- **Deposisi Menggunakan Amonia**

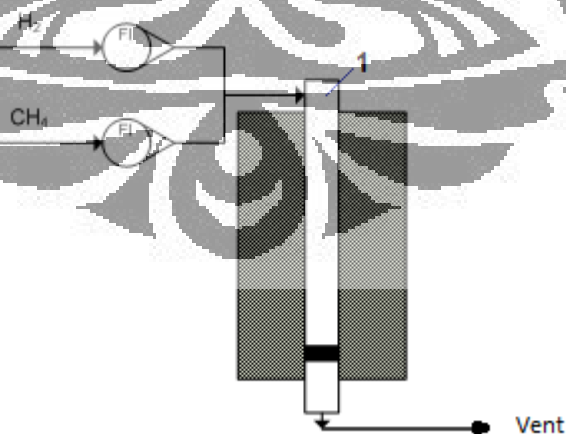
Secara umum, prosedur deposisi menggunakan amonia sama dengan prosedur deposisi menggunakan urea. Perbedaannya terletak pada jumlah amonia yang ditambahkan, yaitu dengan prosedur sebagai berikut.

- 1) Melakukan perhitungan secara stoikiometri untuk mendapatkan jumlah amonia yang sesuai untuk menggantikan urea. Perhitungan selengkapnya dapat dilihat pada Lampiran 1.

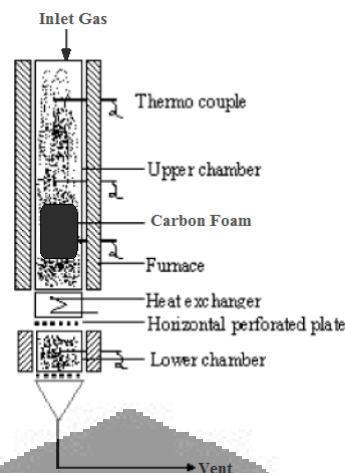
- 2) Melakukan deposisi sesuai dengan metode deposisi yang menggunakan urea, dengan waktu deposisi 24 jam.
- 3) Mengamati hasil deposisi selama 24 jam, jika terbentuk endapan maka dapat disimpulkan bahwa deposisi menggunakan amonia dengan jumlah yang dihitung secara stoikiometri telah berhasil. Namun, jika ternyata belum terbentuk endapan maka dilakukan deposisi ulang dengan menambahkan sejumlah amonia pada konsentrasi tertentu hingga terbentuk endapan pertama. Deposisi kedua dilakukan selama 24 jam, sehingga total waktu deposisi untuk amonia menjadi 48 jam jika dilakukan deposisi ulang.
- 4) Menghitung perbandingan mol amonia terhadap mol nikel.
- 5) Melakukan karakterisasi SEM untuk melihat morfologi *carbon foam* yang sudah dideposisi katalis Ni.
- 6) Membandingkan hasil ketiga metode deposisi yang dilakukan.

3.2.3 Set-up Reaktor

Skema rangkaian peralatan yang terdiri dari reaktor, *furnace*, tabung gas, dan *flow meter* dapat dilihat pada Gambar 3.2, di mana bagian yang ditunjukkan dengan angka 1 merupakan reaktor jenis *fixed bed* yang digunakan pada penelitian ini yang dapat dilihat pada Gambar 3.3.



Gambar 3.2 Rangkaian peralatan



Gambar 3.3 Reaktor *fixed bed* untuk reaksi dekomposisi katalitik metana

Sebelum digunakan untuk reaksi dekomposisi metana, dilakukan beberapa kalibrasi seperti:

- Kalibrasi laju alir gas dengan menggunakan *bubble soap*
- Kalibrasi data akuisisi dengan menggunakan mVoltmeter

Setelah dilakukan kalibrasi, reaktor siap digunakan, *Carbon foam* dimasukkan ke dalam reaktor untuk penumbuhan nanokarbon.

3.2.4 Sintesis Nanokarbon

Penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dilakukan melalui reaksi dekomposisi metana dengan langkah-langkah sebagai berikut.

- 1) Memasukkan *carbon foam* ke dalam reaktor dan merangkai peralatan seperti pada gambar 3.2.
- 2) Melakukan uji kebocoran dengan mengalirkan gas nitrogen.
- 3) Setelah sudah dapat dipastikan tidak ada kebocoran, menaikkan temperatur *furnace* hingga 500°C.
- 4) Mengalirkan gas hidrogen selama 2 jam setelah mencapai temperatur 500°C (temperatur dijaga konstan, laju alir gas dijaga konstan yaitu 20 ml/menit) untuk reduksi.
- 5) Setelah 2 jam, aliran gas diganti dengan metana dengan laju alir yang sama selama 5 jam.

- 6) Setelah selesai, aliran gas dimatikan dan reaktor didinginkan hingga temperatur ruang.
- 7) Mengeluarkan *carbon foam* dari reaktor dan menimbanginya.
- 8) Melakukan karakterisasi akhir terhadap luas permukaan dan morfologi *carbon foam* yang telah ditumbuhi nanokarbon.

3.2.5 Karakterisasi

Karakterisasi yang akan dilakukan antara lain:

- 1) Karakterisasi luas permukaan *carbon foam* menggunakan BET.
- 2) Karakterisasi SEM bertujuan untuk melihat morfologi *carbon foam*.

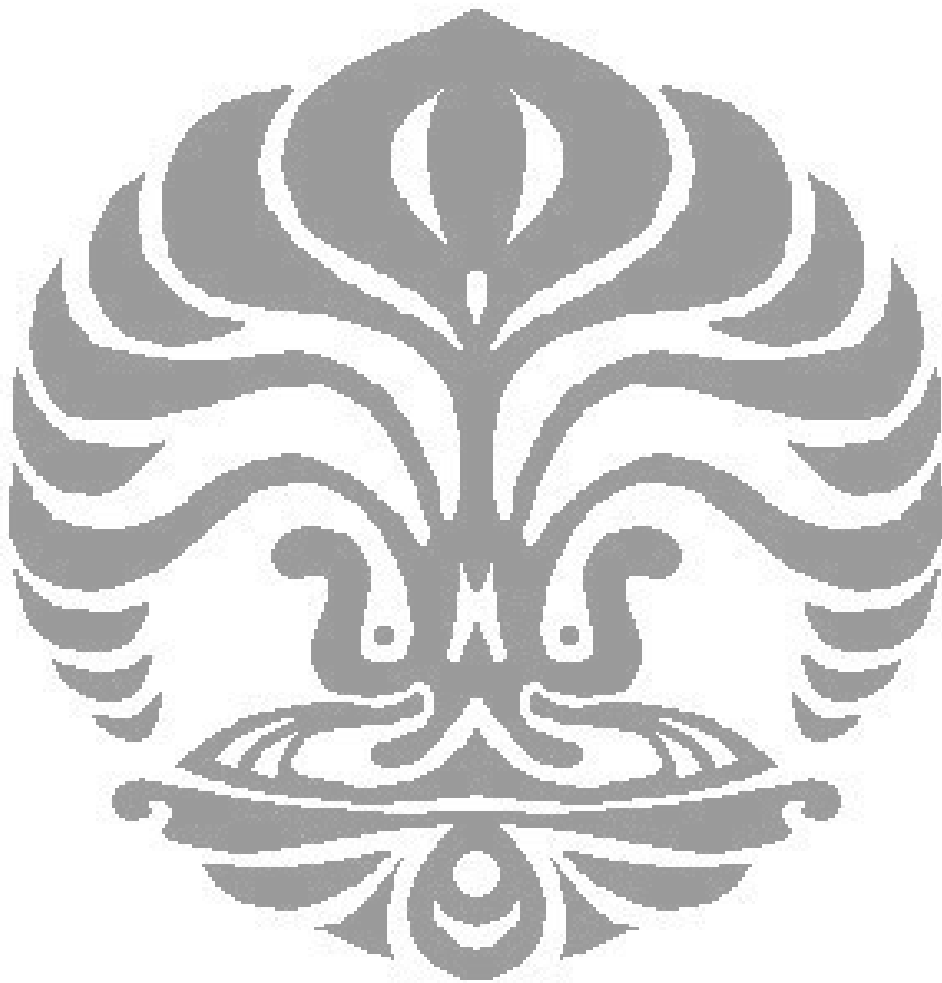
3.3 Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan selama penelitian adalah sebagai berikut:

- | | |
|-------------------------------|-------------------------------|
| - Beaker Glass | - Termometer |
| - Gelas ukur | - Reaktor kuarsa |
| - Spatula | - Soap bubbler |
| - Pinset | - Flowmeter |
| - Hotplate & Magnetic Stirrer | - Digital atmospheric furnace |
| - Timbangan digital | - Digital tube furnace |
| - Cawan keramik | - Alat SEM |
| - pH meter atau pH indikator | - Alat BET |

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

- *Carbon foam*
- Nikel nitrat heksahidrat, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Asam nitrat 65%, HNO_3 , Merck
- Urea, $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$
- Amonia, NH_3
- Aseton
- Gas Metana
- Gas Hidrogen
- *Deionized (demineralized) water*

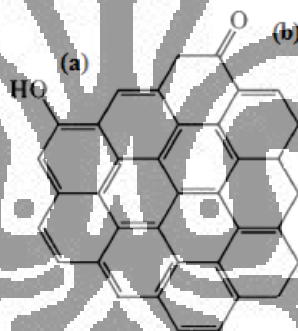


BAB 4

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Deposisi dan Karakterisasi Katalis

Katalis nikel dideposisi pada *carbon foam* dengan metode presipitasi. Sebelum melakukan deposisi nikel, *carbon foam* dioksidasi menggunakan asam nitrat pekat selama 60 menit. Oksidasi bertujuan untuk membentuk gugus yang mengandung oksigen (dapat berupa hidroksil atau karbonil) yang berfungsi sebagai situs penjangkaran (*anchoring site*) sehingga prekursor nikel dapat berlabuh pada permukaan *carbon foam*. Gambar 4.1 memperlihatkan gugus yang terbentuk pada permukaan *carbon foam* akibat oksidasi menggunakan asam nitrat. Prekursor yang digunakan pada penelitian ini adalah nikel nitrat heksahidrat, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, dengan jumlah prekursor mengikuti perbandingan berat optimal yang diperoleh pada penelitian sebelumnya (Wenmakers, 2008), yaitu 20 g Ni/g *carbon foam*.



Gambar 4.1 Gugus yang terbentuk pada *carbon foam* akibat oksidasi menggunakan asam nitrat; (a) hidroksil, (b) karbonil

Prekursor nikel nitrat dilarutkan dalam *demineralized water*. Larutan tersebut dipanaskan hingga suhu 90°C menggunakan *hot plate* sambil terus diaduk menggunakan *magnetic stirrer*. Suhu 90°C merupakan suhu yang optimal untuk proses pelarutan garam nikel hingga membentuk ion kompleksnya, sedangkan pengadukan bertujuan untuk mendapatkan larutan yang homogen. Setelah mencapai suhu 90°C , selanjutnya dilakukan pengecekan pH larutan. Pada metode presipitasi, pengendalian pH merupakan langkah yang sangat penting karena akan mempengaruhi ukuran partikel inti aktif. Berdasarkan penelitian sebelumnya

(Wenmakers, 2008), diketahui bahwa pH optimal untuk deposisi ini adalah 3,5. Jika ternyata pH larutan tersebut belum mencapai 3,5 maka dapat ditambahkan sedikit asam nitrat sehingga pH larutan menjadi 3,5.

Setelah semua kondisi optimal tersebut tercapai, selanjutnya dilakukan penambahan *precipitating agent* ke dalam larutan. *Precipitating agent* yang biasa digunakan dalam metode presipitasi katalis nikel adalah urea, dengan perbandingan mol 1 : 3 (mol nikel : mol urea). Namun, pada penelitian ini digunakan *precipitating agent* lain selain urea yaitu amonia. Penggunaan amonia didasari oleh pengetahuan bahwa urea dalam air akan terdisosiasi menjadi ion-ion, yang diperlihatkan pada persamaan 4.1 sebagai berikut.



Pada prinsipnya, senyawa yang berperan dalam proses pengendapan nikel adalah NH_4^+ . Senyawa tersebut dapat diperoleh langsung dari *self-dissociation* amonia. Seperti air, amonia dapat mengalami autoionisasi molekuler membentuk asam dan basa konjugat yang dapat dilihat pada persamaan 4.2 sebagai berikut.



Substitusi urea oleh amonia ini diharapkan dapat mengoptimalkan proses serta mengurangi biaya produksi. Amonia merupakan bahan baku utama untuk memproduksi urea, sehingga dapat disimpulkan bahwa amonia bernilai ekonomi lebih rendah dibandingkan dengan urea. Perhitungan jumlah amonia yang digunakan untuk menggantikan urea dapat dilihat pada Lampiran A. Perhitungan tersebut diharapkan dapat menjadi pedoman untuk penelitian-penelitian selanjutnya yang menggunakan amonia. Penambahan *precipitating agent*, baik urea maupun amonia, dilakukan sedikit demi sedikit pada suhu yang dijaga tetap 90°C dan terus diaduk. Hal ini dilakukan agar proses pengendapan dapat terjadi secara merata. Setelah selesai, larutan diangkat dari *heater* dan *carbon foam* yang sudah dioksidasi tadi dimasukkan ke dalam larutan.

4.1.1 Deposisi Menggunakan Urea

Untuk deposisi menggunakan urea, waktu deposisi dilakukan bervariasi selama 12 jam dan 24 jam. Hal ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh waktu

deposisi terhadap *loading* katalis yang dihasilkan. Sampel C1 merupakan *carbon foam* yang dideposisi menggunakan urea dengan waktu deposisi 12 jam dan sampel C2 dengan waktu deposisi 24 jam. *Loading* nikel yang dicapai oleh kedua sampel yang berbeda tersebut dapat dilihat pada Tabel 4.1.

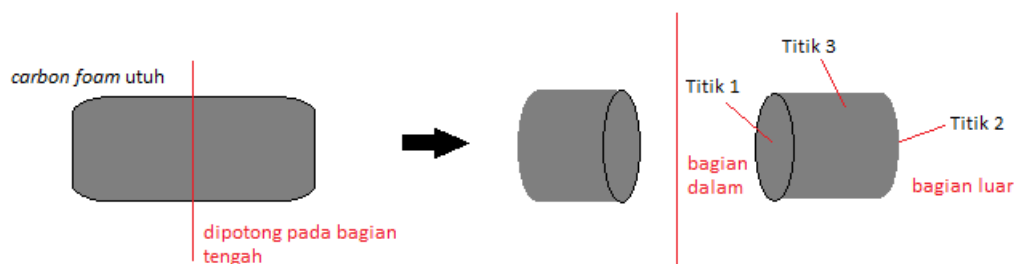
Tabel 4.1 Hasil *loading* nikel untuk deposisi menggunakan urea dengan waktu deposisi yang berbeda.

Sampel	C1	C2
Waktu deposisi (jam)	12	24
Berat awal (g)	0,1228	0,1606
Berat setelah deposisi (g)	0,1263	0,1678
<i>Loading</i> katalis (g Ni/g CF)	0,0285	0,0448

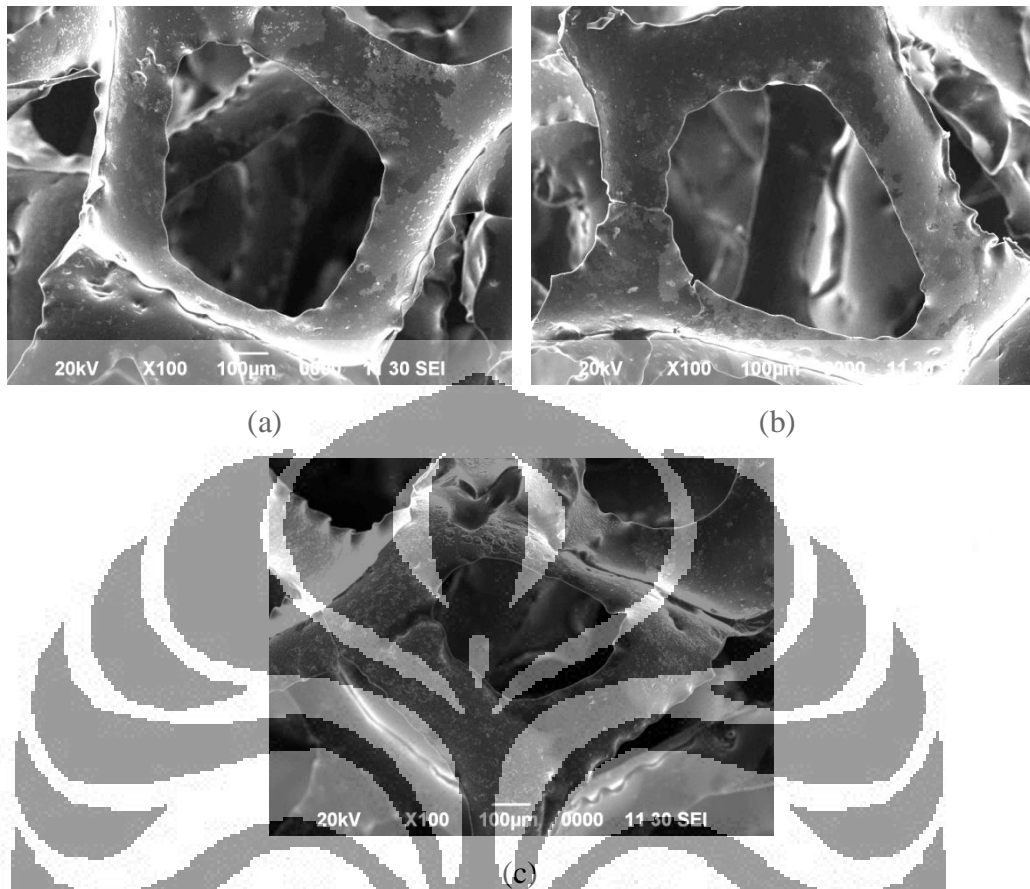
Dari tabel di atas dapat diketahui bahwa waktu deposisi berpengaruh terhadap *loading* katalis yang dihasilkan. Waktu deposisi 24 jam menghasilkan *loading* yang jauh lebih besar (hampir dua kali lipat) dibandingkan dengan waktu deposisi 12 jam. Data kuantitatif tersebut diperkuat oleh data kualitatif berupa hasil karakterisasi menggunakan SEM. Berikut penjelasan mengenai hasil karakterisasi SEM untuk kedua sampel di atas.

- **Waktu Deposisi 12 Jam**

Sampel C1, dengan waktu deposisi 12 jam, menunjukkan *loading* nikel hidroksida yang tidak merata pada permukaan *carbon foam*. Morfologi permukaan sampel C1 tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.3. Untuk memastikan pemerataan hasil, pengambilan gambar SEM dilakukan pada tiga titik yang berbeda, yang dijelaskan pada Gambar 4.2.

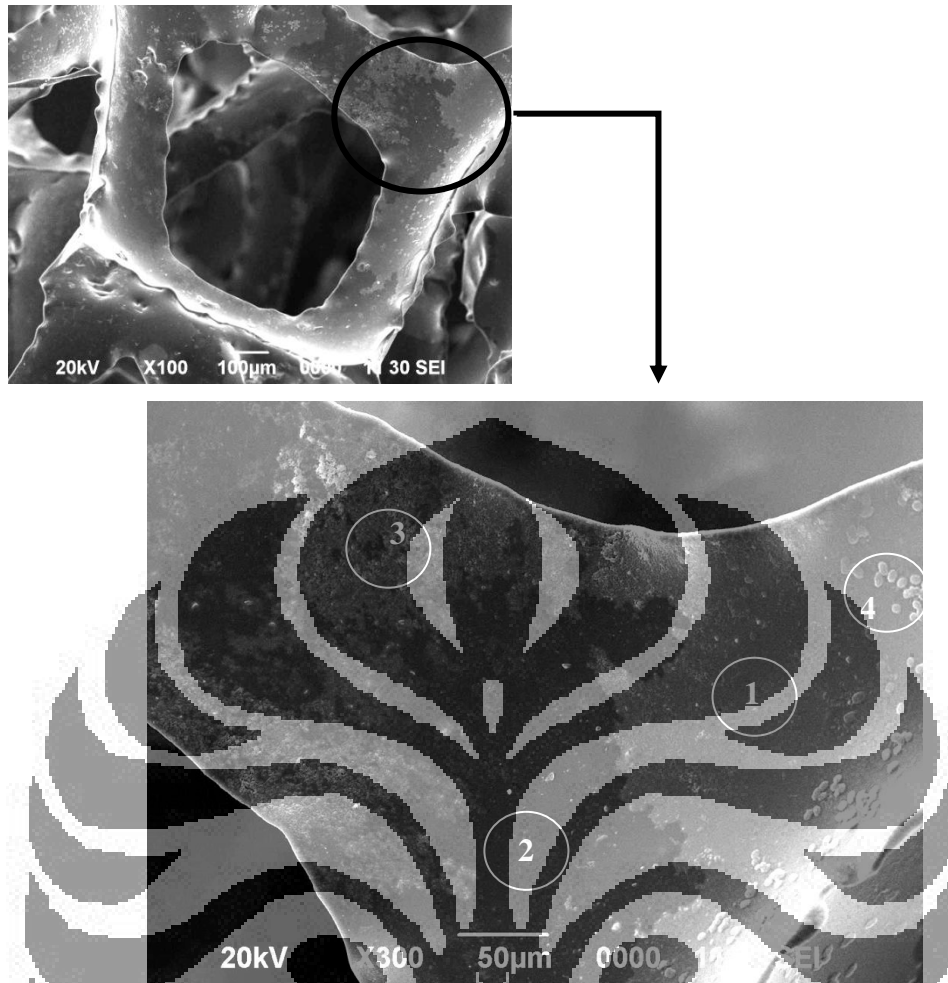


Gambar 4.2 Titik pengambilan gambar SEM



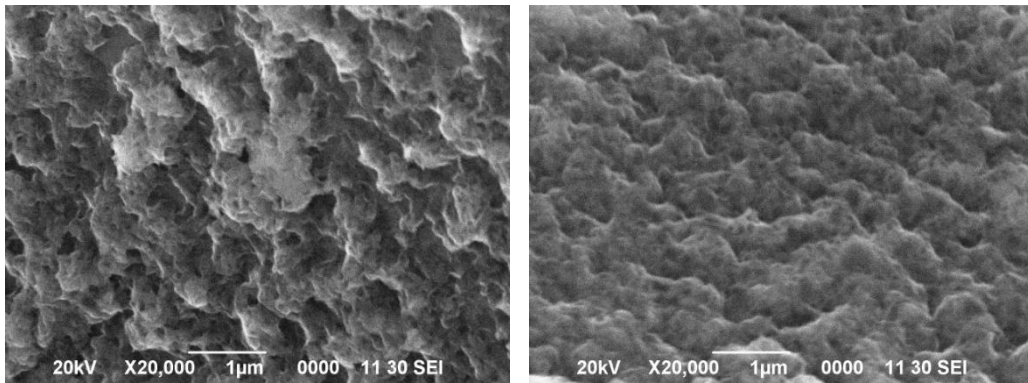
Gambar 4.3 Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan *carbon foam* sampel C1 pada tiga titik yang berbeda: (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3

Dari gambar di atas, dapat dilihat bahwa banyak daerah yang belum tertutupi nikel. Meskipun terdapat daerah yang sudah tertutupi nikel, namun lapisan nikel yang terbentuk tidak homogen. Sedangkan dari hasil pengambilan pada tiga titik yang berbeda, dapat disimpulkan bahwa nikel terdeposisi tidak hanya pada sisi bagian luar *carbon foam* melainkan hingga ke sisi bagian dalam dari struktur *foam* tersebut (Titik 1). Gambar 4.4 menunjukkan hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi sehingga dapat dilihat dispersi nikel hidroksida pada permukaan *carbon foam* dengan lebih jelas. Dari gambar tersebut dapat diamati bahwa terdapat empat jenis daerah pada permukaan *carbon foam*, yaitu (1) daerah yang tertutupi lapisan nikel hidroksida secara merata, (2) daerah yang tidak tertutupi lapisan nikel hidroksida, (3) daerah yang tertutupi lapisan nikel hidroksida namun tidak merata, dan (4) daerah di mana banyak lapisan nikel hidroksida yang menggumpal.

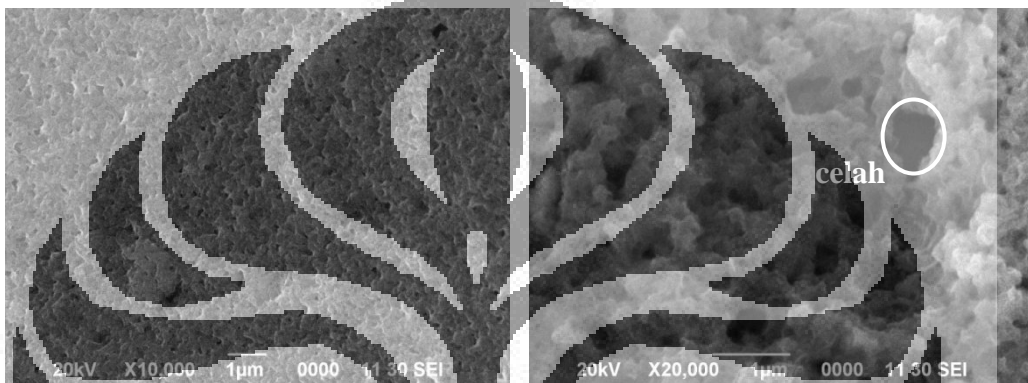


Gambar 4.4 Hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi menunjukkan empat jenis daerah yang berbeda pada permukaan *carbon foam*

Selain itu, deposisi nikel hidroksida yang tidak homogen menunjukkan perbedaan struktur kristal nikel yang terbentuk. Struktur kristal tersebut antara lain berupa *spongy structure* dan *leaflet structure* (Wenmakers, 2008) yang dapat dilihat pada Gambar 4.5. Lapisan nikel hidroksida yang berbentuk spons (*spongy structure*) biasanya ditemukan pada bagian persimpangan dari serat-serat *carbon foam*. Pada jenis struktur ini ditemui lebih banyak bagian kosong (celah) dan lapisan nikel hidroksida yang retak dibandingkan dengan jenis *leaflet*.



(a) Perbesaran 20000x

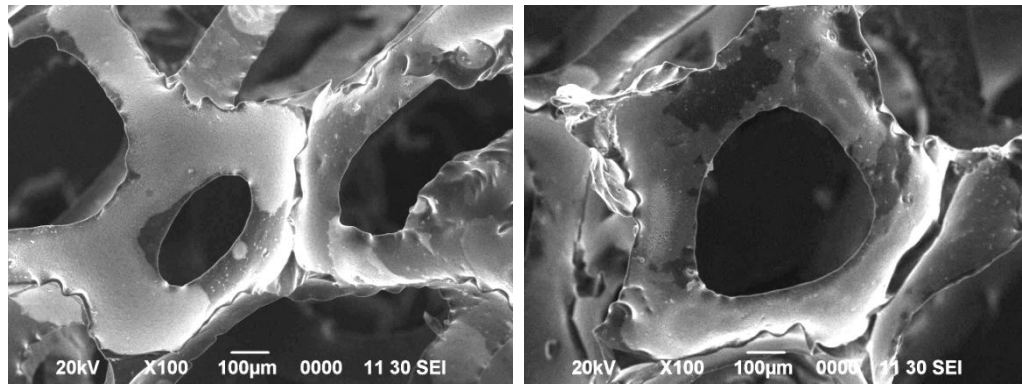


(b) Perbesaran 10000x (kiri) dan 20000x (kanan)

Gambar 4.5 Hasil SEM yang menunjukkan perbedaan bentuk struktur kristal nikel hidroksida pada permukaan *carbon foam*; (a) *leaflet structure* (b) *spongy structure*

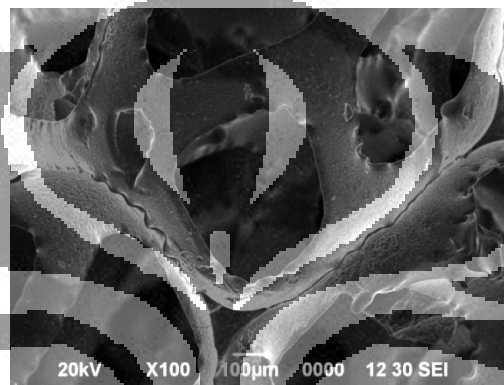
- **Waktu Deposisi 24 Jam**

Berbeda dengan sampel C1, sampel C2 dengan waktu deposisi 24 jam menunjukkan *loading* nikel hidroksida yang lebih merata. Hal tersebut dapat dilihat dari Gambar 4.6. Gambar 4.7 yang memperlihatkan hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi juga menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang homogen pada permukaan *carbon foam* sampel C2. Pada gambar tersebut, tidak ditemukan lagi daerah-daerah seperti pada Gambar 4.4, namun pada beberapa titik masih terlihat adanya gumpalan nikel hidroksida, yang ditunjukkan oleh lingkaran merah.



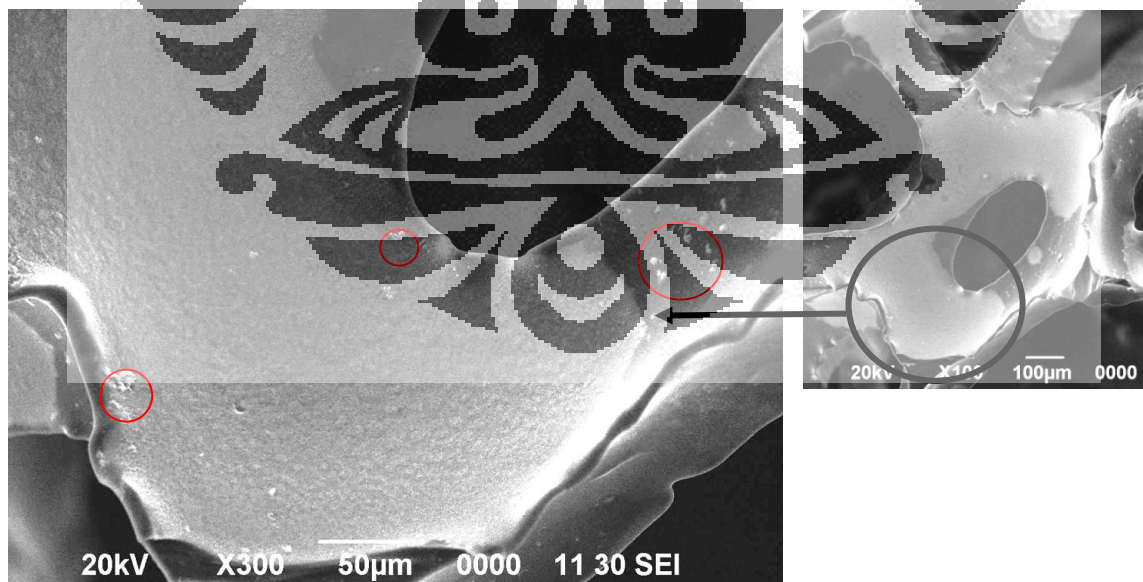
(a)

(b)



(c)

Gambar 4.6 Hasil SEM yang menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang lebih merata pada permukaan sampel C2 yang diambil pada tiga titik yang berbeda: (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3



Gambar 4.7 Hasil SEM dengan perbesaran yang lebih tinggi menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang homogen pada sampel C2, namun pada beberapa titik masih ditemukan gumpalan nikel hidroksida (ditunjukkan oleh lingkaran merah)

4.1.2 Deposisi Menggunakan Amonia

Sedangkan untuk deposisi menggunakan amonia sebagai *precipitating agent*, dengan menggunakan hasil perhitungan yang sesuai dengan stoikiometri dan waktu deposisi selama 24 jam ternyata belum terlihat ada nikel yang mengendap di dasar gelas beaker. Didapati larutan hijau yang jernih seperti saat awal sebelum ditambahkan amonia, yang dapat dilihat pada Gambar 4.8. Hal tersebut mengindikasikan bahwa metode presipitasi yang dilakukan tidak berhasil. Untuk itu, dilakukan deposisi ulang dengan menggunakan amonia pada konsentrasi yang ditentukan, hingga jumlah amonia yang ditambahkan mencapai perbandingan 1 : 1 (mol nikel : mol amonia) dengan perhitungan yang lengkap dapat dilihat pada Lampiran A. Penambahan amonia dilakukan sedikit demi sedikit hingga terbentuk endapan pertama. Hasil deposisi tersebut dapat dilihat pada Tabel 4.2.

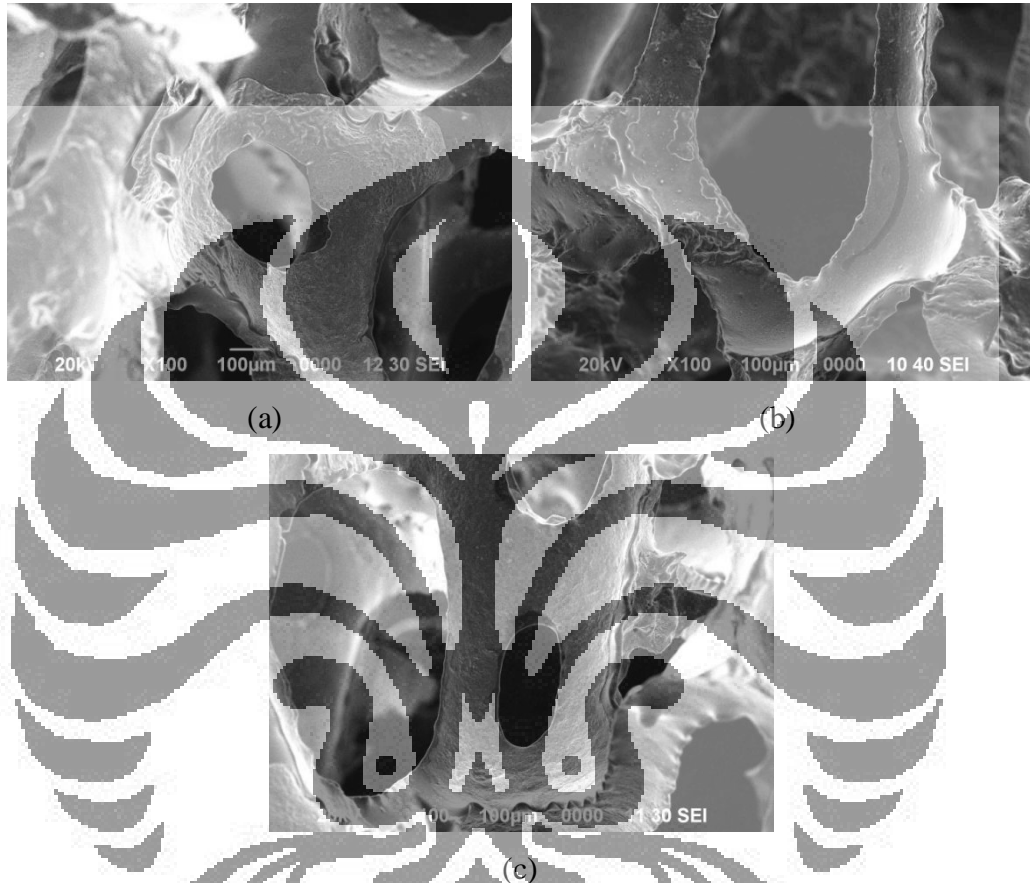


Gambar 4.8 Hasil deposisi menggunakan amonia yang belum terlihat adanya endapan nikel.

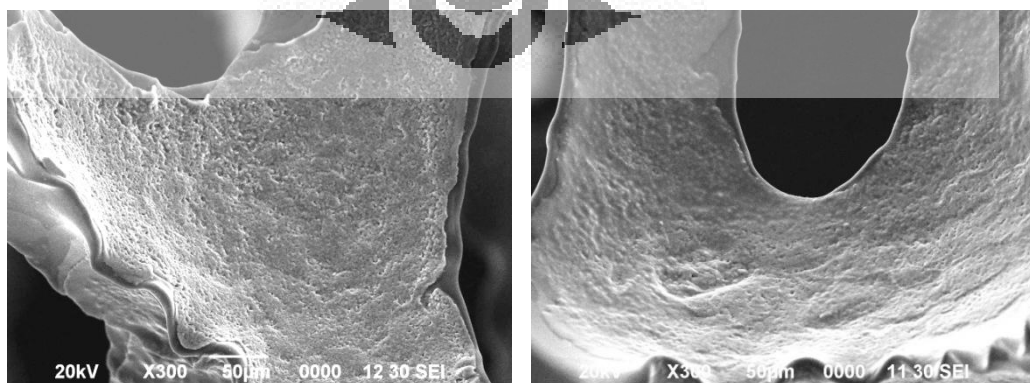
Tabel 4.2 Hasil deposisi menggunakan amonia

Sampel	C3
Waktu deposisi (jam)	48
Berat awal (g)	0,1785
Berat setelah deposisi (g)	0,2016
Loading katalis (g Ni/g CF)	0,1294

Sampel C3 yang dideposisi menggunakan amonia dengan total waktu deposisi selama 48 jam menghasilkan *loading* katalis yang sangat besar. Sedangkan hasil karakterisasi menggunakan SEM menunjukkan dispersi nikel hidroksida yang merata dan terlihat lebih tebal. Hal tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.9 dan Gambar 4.10 sebagai berikut.

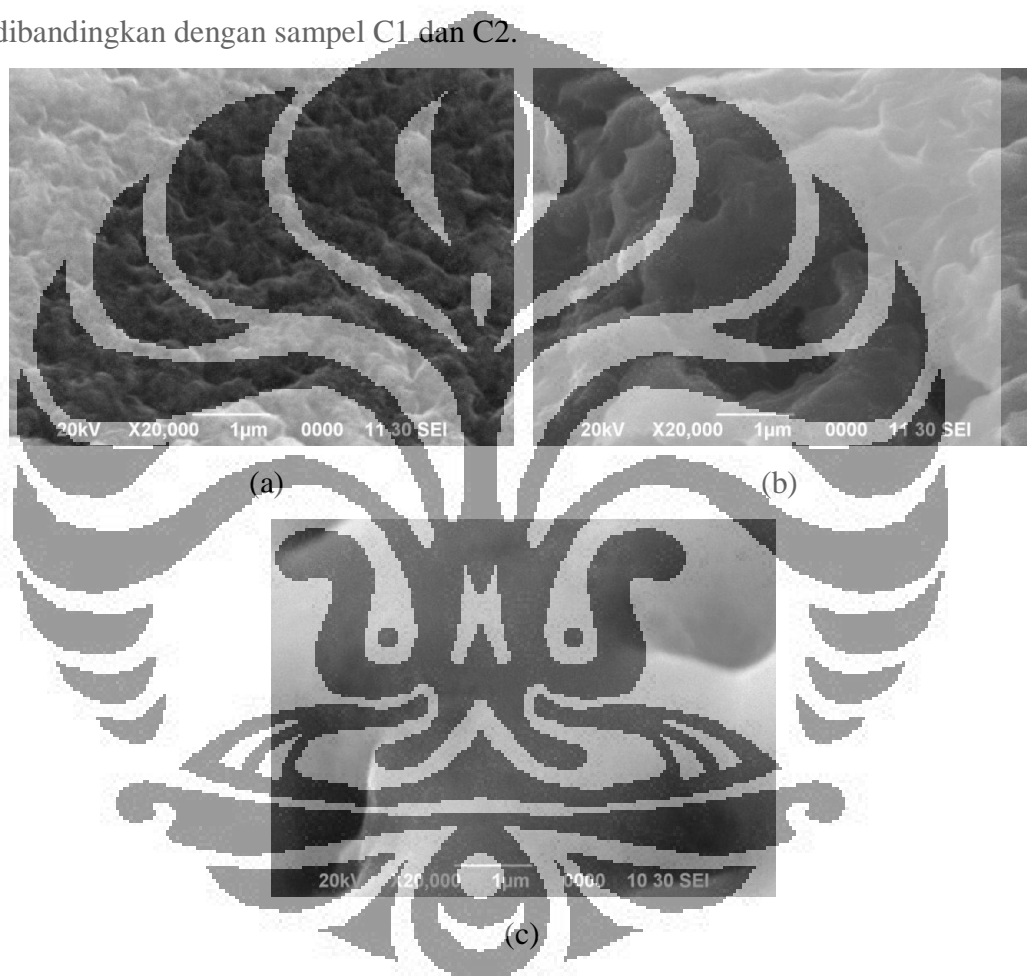


Gambar 4.9 Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan *carbon foam* sampel C3 pada tiga titik yang berbeda; (a) Titik 1, (b) Titik 2, (c) Titik 3



Gambar 4.10 Hasil SEM yang menunjukkan bahwa deposisi menggunakan amonia selama 48 jam menghasilkan lapisan nikel yang tebal pada permukaan *carbon foam*

Dengan menggunakan perbesaran yang lebih tinggi, dapat dilihat perbedaan ukuran dan ketebalan struktur kristal nikel hidroksida pada permukaan *carbon foam* untuk ketiga metode deposisi pada Gambar 4.11. Dari gambar tersebut dapat dilihat bahwa sampel C3 memiliki ukuran kristal yang jauh lebih besar dan menghasilkan lapisan nikel hidroksida yang jauh lebih tebal dibandingkan dengan sampel C1 dan C2.



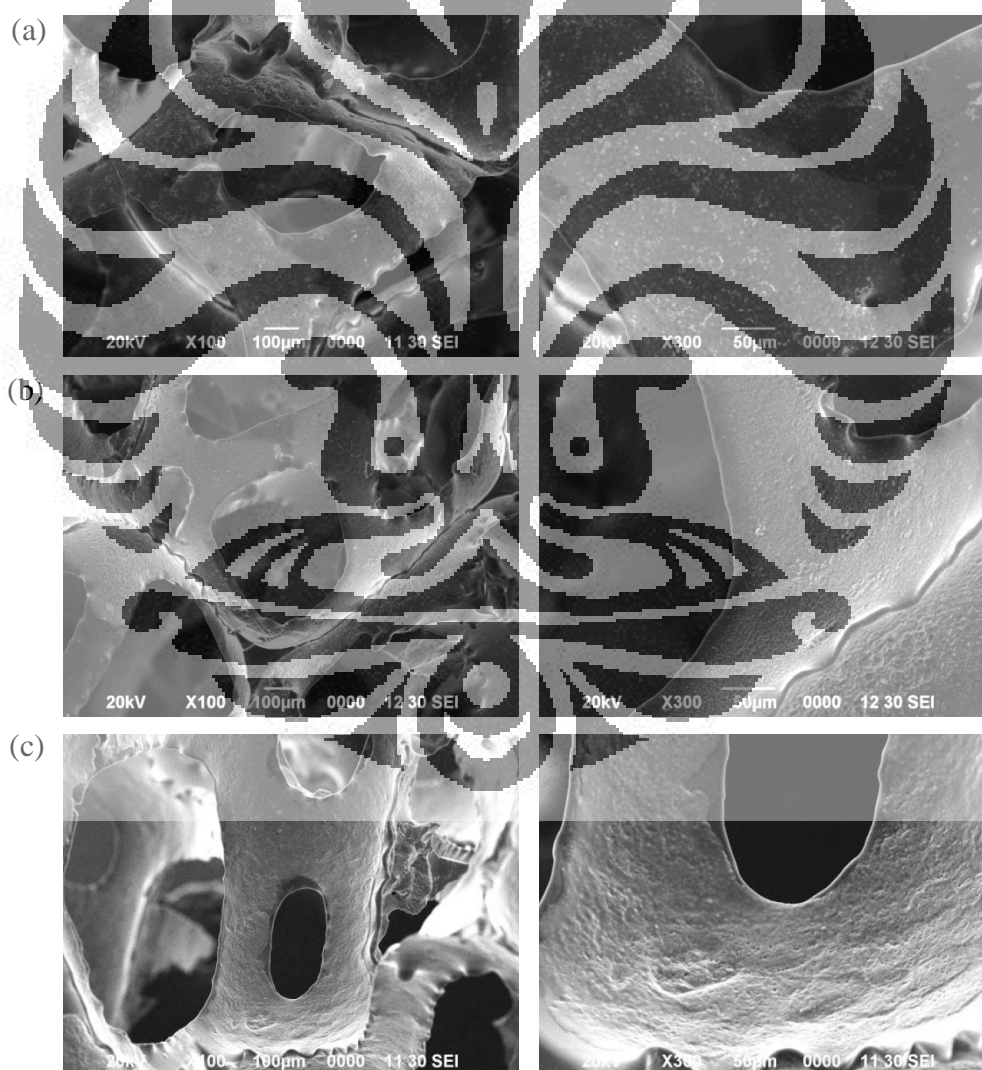
Gambar 4.11 Hasil SEM yang menunjukkan perbedaan struktur kristal nikel yang terbentuk pada permukaan *carbon foam* ketiga sampel; (a) Sampel C1, (b) Sampel C2, (c) Sampel C3

4.1.3 Perbandingan Hasil Deposisi Menggunakan Urea dan Amonia

Berdasarkan penjabaran hasil deposisi ketiga sampel, dapat dibuat perbandingan hasil ketiga metode deposisi yang telah dilakukan. Perbandingan hasil secara umum dapat dilihat pada Tabel 4.3, sedangkan perbandingan hasil karakterisasi menggunakan SEM dapat dilihat pada Gambar 4.12.

Tabel 4.3 Perbandingan hasil deposisi ketiga sampel, C1, C2, dan C3

Sampel	C1	C2	C3
<i>Precipitating agent</i>	Urea	Urea	Amonia
Jumlah <i>precipitating agent</i> yang ditambahkan (mol nikel : mol <i>precipitant</i>)	1 : 3	1 : 3	1 : 1
Waktu deposisi (jam)	12	24	48
<i>Loading katalis</i> (g Ni/g CF)	0,0285	0,0448	0,1294
Lapisan nikel yang terbentuk	Tidak merata, tipis	Merata, tipis	Merata, tebal



Gambar 4.12 Hasil SEM yang menunjukkan perbandingan hasil deposisi pada ketiga sampel;

(a) Sampel C1, (b) Sampel C2, (c) Sampel C3

4.2 Penumbuhan Nanokarbon pada *Carbon Foam*

Pada penelitian ini, penumbuhan nanokarbon hanya dilakukan pada satu sampel, yaitu sampel C2, dengan tujuan hanya untuk membuktikan bahwa nanokarbon berhasil tumbuh pada *carbon foam*. Pemilihan sampel C2 didasari oleh hasil deposisi nikel yang merata, tidak terlalu tebal, dan ukuran kristal yang tidak terlalu besar. Diketahui *loading* nikel pada sampel C1 tidak merata, sedangkan pada sampel C3, meskipun *loading* yang dihasilkan jauh lebih besar dan merata, namun karena ukuran kristalnya jauh lebih besar dan tebal (dapat dilihat pada Gambar 4.11), maka sampel ini tidak dipilih untuk direaksikan. Hal ini dikarenakan ukuran kristal nikel sangat berpengaruh terhadap pertumbuhan nanokarbon. (Chen, 2004).

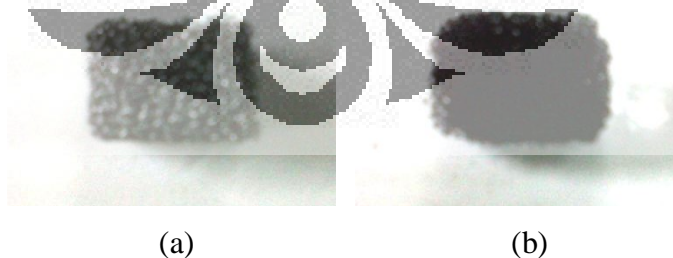
Kristal nikel yang berukuran kecil menghasilkan laju pertumbuhan nanokarbon yang rendah dan deaktivasi yang cepat. Sedangkan kristal yang berukuran besar juga menghasilkan laju pertumbuhan yang rendah akibat luas permukaan yang rendah pula. Sedangkan ketebalan lapisan katalis berpengaruh pada proses nukleasi karbon pada logam. Proses nukleasi merupakan faktor penting yang menentukan jenis karbon yang dihasilkan pada reaksi dekomposisi metana (Kuznetov, 2001). Proses nukleasi ini merupakan proses presipitasi beberapa karbon pada permukaan partikel logam yang jenuh karbon (*carbon-saturated metal particles*). Semakin tebal lapisan nikel, maka proses penjenuhan nikel oleh karbon akan membutuhkan waktu yang lebih lama. Oleh karena itu, untuk mengoptimalkan pertumbuhan nanokarbon dipilih ukuran kristal dan lapisan nikel yang medium, yang diperoleh dari sampel C2 pada penelitian ini.

Penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* dilakukan melalui reaksi dekomposisi katalitik metana pada suhu 500°C dan tekanan atmosferik. Suhu 500°C diketahui merupakan suhu optimal untuk penumbuhan nanokarbon. Reaksi dilakukan dengan memanaskan reaktor hingga mencapai suhu 500°C dan mengalirkan gas metana dengan laju alir 20 ml/menit selama 5 jam. Laju alir tersebut disesuaikan dengan ukuran reaktor yang digunakan sehingga dapat diperoleh *yield* produk yang optimal. Sedangkan waktu reaksi 5 jam merupakan waktu reaksi yang optimal untuk penumbuhan nanokarbon berdasarkan penelitian sebelumnya (Wenmakers, 2008). Namun, sebelum dilakukan reaksi dekomposisi

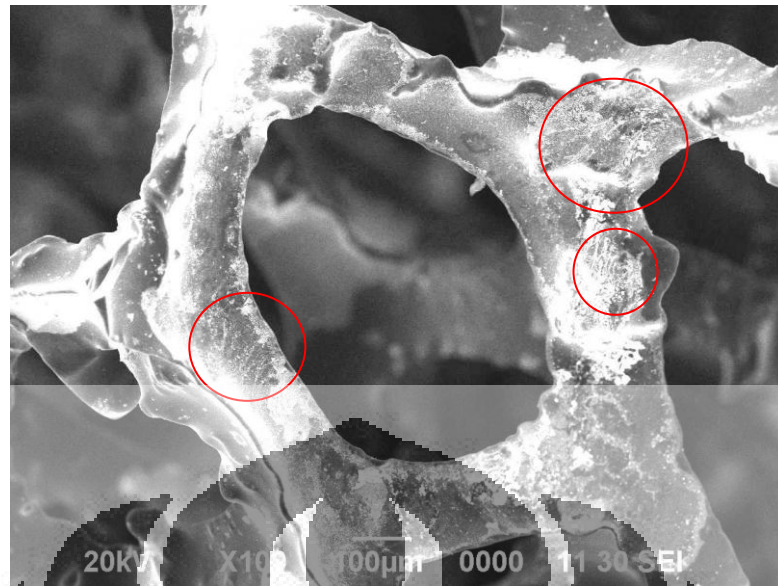
metana, dilakukan reduksi menggunakan gas hidrogen untuk mendapatkan inti aktif nikel. Saat dilakukan pemanasan untuk mencapai suhu 500°C, nikel hidroksida yang terdeposisi pada permukaan *carbon foam* berubah menjadi senyawa oksida, yaitu NiO. Reduksi dilakukan untuk menghilangkan oksida sehingga didapatkan logam nikel sebagai inti aktif katalis. Pada penelitian ini, reduksi dilakukan selama 2 jam dengan laju alir hidrogen yang sama dengan metana, yaitu 20 ml/menit.

Setelah reaksi, dapat dilihat terjadi perubahan fisik pada *carbon foam*, yaitu sampel yang sebelumnya berwarna abu-abu metalik berubah menjadi hitam. Perubahan tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.13. Untuk membuktikan tumbuhnya nanokarbon pada *carbon foam*, dilakukan karakterisasi SEM dan BET. Dengan menggunakan SEM, dapat dilihat morfologi permukaan *carbon foam* yang ditumbuhi nanokarbon. Sedangkan BET digunakan untuk mengetahui luas permukaan *carbon foam* setelah ditumbuhi nanokarbon, yang diharapkan akan meningkat secara signifikan.

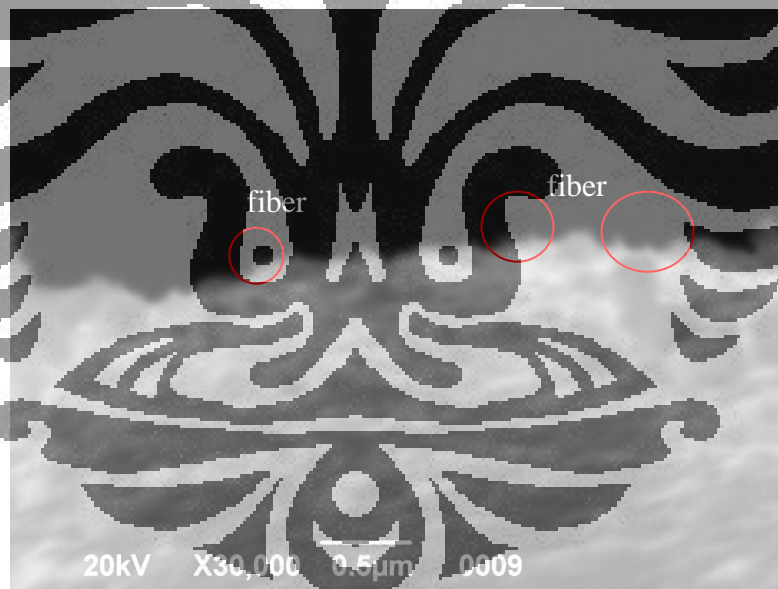
Hasil karakterisasi menggunakan SEM untuk sampel C2 setelah reaksi dapat dilihat pada Gambar 4.14. Dari gambar tersebut, dapat dilihat bahwa terjadi perubahan morfologi permukaan *carbon foam* yang diduga sebagai akibat tumbuhnya nanokarbon. Pada gambar tersebut juga ditemukan bentuk yang menyerupai serat-serat (*fiber*) yang diduga sebagai karbon nanofiber. Untuk membuktikan hal tersebut, dilakukan karakterisasi SEM dengan perbesaran yang jauh lebih besar, yang dapat dilihat pada Gambar 4.15.



Gambar 4.13 *Carbon foam* sebelum (a) dan setelah (b) reaksi dekomposisi metana



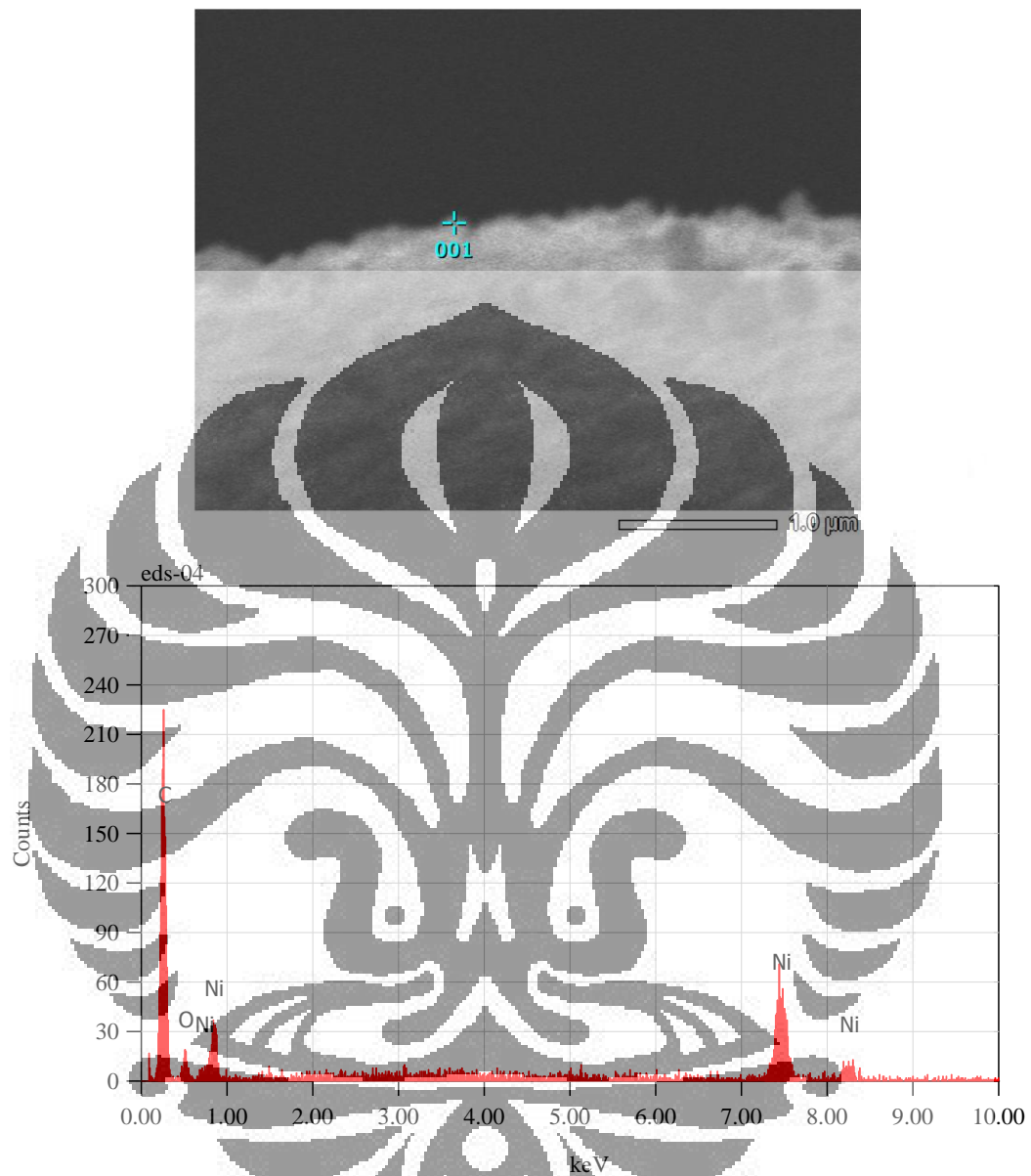
Gambar 4.14 Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan *carbon foam* setelah reaksi dekomposisi metana. Bagian yang dilingkari merah diduga sebagai daerah yang ditumbuhi nanokarbon



Gambar 4.15 Hasil SEM yang menunjukkan morfologi permukaan *carbon foam* yang memperlihatkan bentuk serat-serat yang diduga sebagai nanokarbon jenis filamen

Gambar 4.15 memperlihatkan terbentuknya serat-serat pada permukaan *carbon foam* yang diduga sebagai nanokarbon jenis filamen. Untuk lebih meyakini hal tersebut, dilakukan karakterisasi SEM EDS untuk mengetahui jenis senyawa yang sebenarnya. Karakterisasi dilakukan pada titik yang berbentuk

serat, yang diduga sebagai nanokarbon. Hasil karakterisasi EDS dapat dilihat pada Gambar 4.16 sebagai berikut.



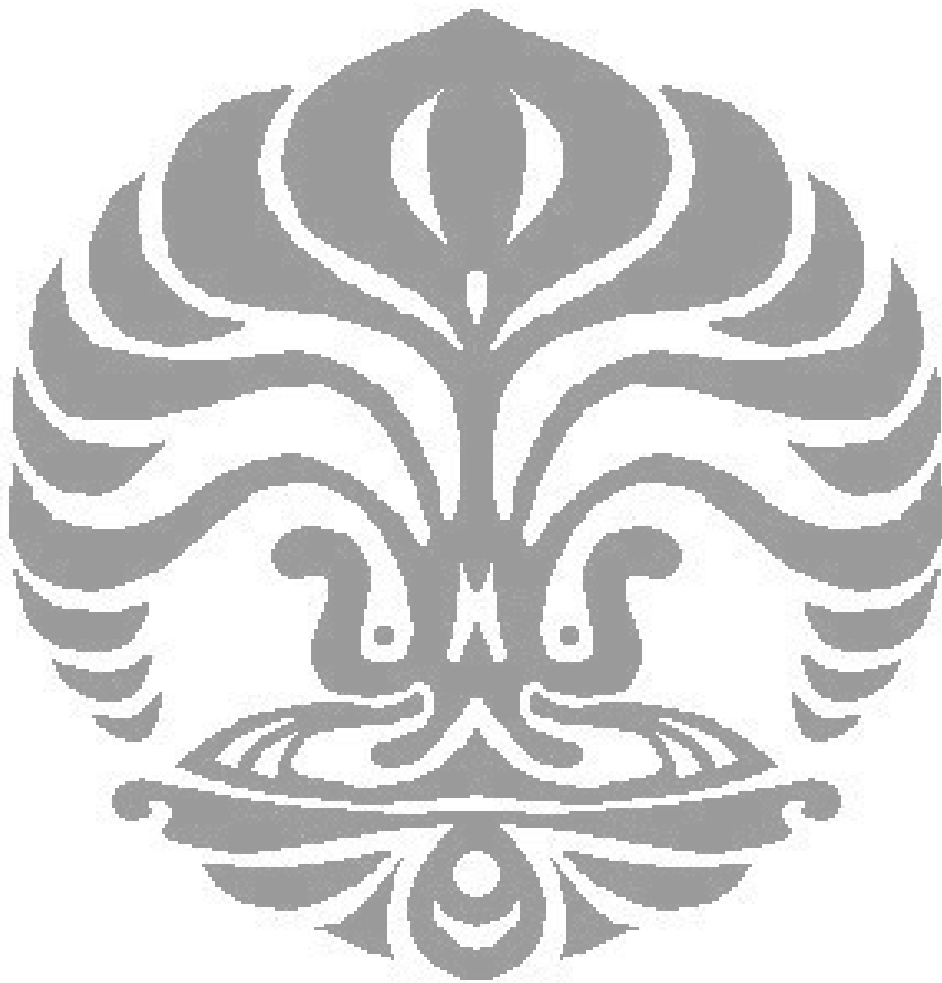
Gambar 4.16 Hasil analisis EDS pada titik yang diduga serat nanokarbon

Hasil EDS menunjukkan bahwa senyawa yang terbentuk merupakan karbon. Namun, hasil tersebut juga menunjukkan bahwa terdapat zat pengotor yang berupa logam katalis nikel dan oksida dengan konsentrasi yang cukup tinggi, yaitu masing-masing 29,83 dan 8,13 %wt. Hal tersebut mengindikasikan bahwa reduksi katalis dan reaksi penumbuhan nanokarbon yang dilakukan belum optimal, atau memang diperlukan pemurnian lebih lanjut terhadap komposit nanokarbon-*carbon foam* sehingga dapat meminimisasi zat pengotor yang

terdapat pada substrat katalis yang dihasilkan. Salah satu cara yang dapat digunakan untuk proses pemurnian komposit nanokarbon-*carbon foam* adalah dengan oksidasi menggunakan asam nitrat (Chinthaginjala, 2007). Sedangkan masalah reduksi yang tidak optimal dapat disebabkan oleh jumlah hidrogen yang tidak mencukupi sehingga tidak semua oksida dapat terikat oleh hidrogen. Seharusnya, kebutuhan volume gas hidrogen dihitung secara stoikiometrik berdasarkan oksida maksimal yang terikat oleh partikel Ni selama proses preparasi katalis, sehingga nantinya semua oksida dapat dihilangkan.

Masalah lain, yaitu pertumbuhan nanokarbon yang tidak optimal, dapat disebabkan oleh ukuran kristal maupun ketebalan lapisan nikel pada sampel C2 yang masih terlalu besar, sehingga laju pertumbuhan dan kualitas nanokarbon yang dihasilkan menjadi tidak maksimal. Hal tersebut sesuai dengan teori yang dikemukakan oleh Chen dan Kuznetov yang telah dibahas pada awal sub-bab ini. Ketebalan lapisan dan ukuran inti aktif yang terlalu besar pada sampel C2 ini dapat disebabkan oleh waktu deposisi yang terlalu lama dan jumlah prekursor yang terlalu banyak. Sehingga, untuk penelitian selanjutnya disarankan menggunakan prekursor dengan jumlah yang lebih sedikit dan waktu deposisi yang lebih singkat.

Sedangkan masalah ketebalan dan ukuran katalis yang besar dapat diatasi dengan menyediakan jumlah karbon yang banyak dan waktu reaksi yang lama untuk pembentukan nanokarbon. Jika kedua hal tersebut tidak terpenuhi, inti aktif katalis nikel menjadi tidak jenuh oleh karbon. Menurut Kuznetov (2001), apabila inti aktif katalis kurang jenuh oleh karbon, nukleus yang dihasilkan berukuran relatif besar dan tumbuh secara berkesinambungan menghasilkan pembentukan lembaran grafit yang menutupi sebagian besar permukaan katalis. Sehingga, pertumbuhan nanokarbon yang dihasilkan menjadi tidak maksimal dan jumlah nanokarbon yang keluar dalam bentuk filamen (CNF atau CNT) menjadi sangat sedikit. Akibatnya, luas permukaan substrat katalis yang diperoleh pun menjadi tidak maksimal. Hal tersebut dapat dilihat dari hasil karakterisasi menggunakan BET yang menunjukkan peningkatan luas permukaan *carbon foam* yang tidak terlalu signifikan, yaitu dari 0 m²/g untuk *carbon foam* kosong menjadi 11,55 m²/g untuk komposit nanokarbon-*carbon foam*.



BAB 5

KESIMPULAN

5.1. KESIMPULAN

Dari penelitian ini, dapat disimpulkan beberapa hal berikut:

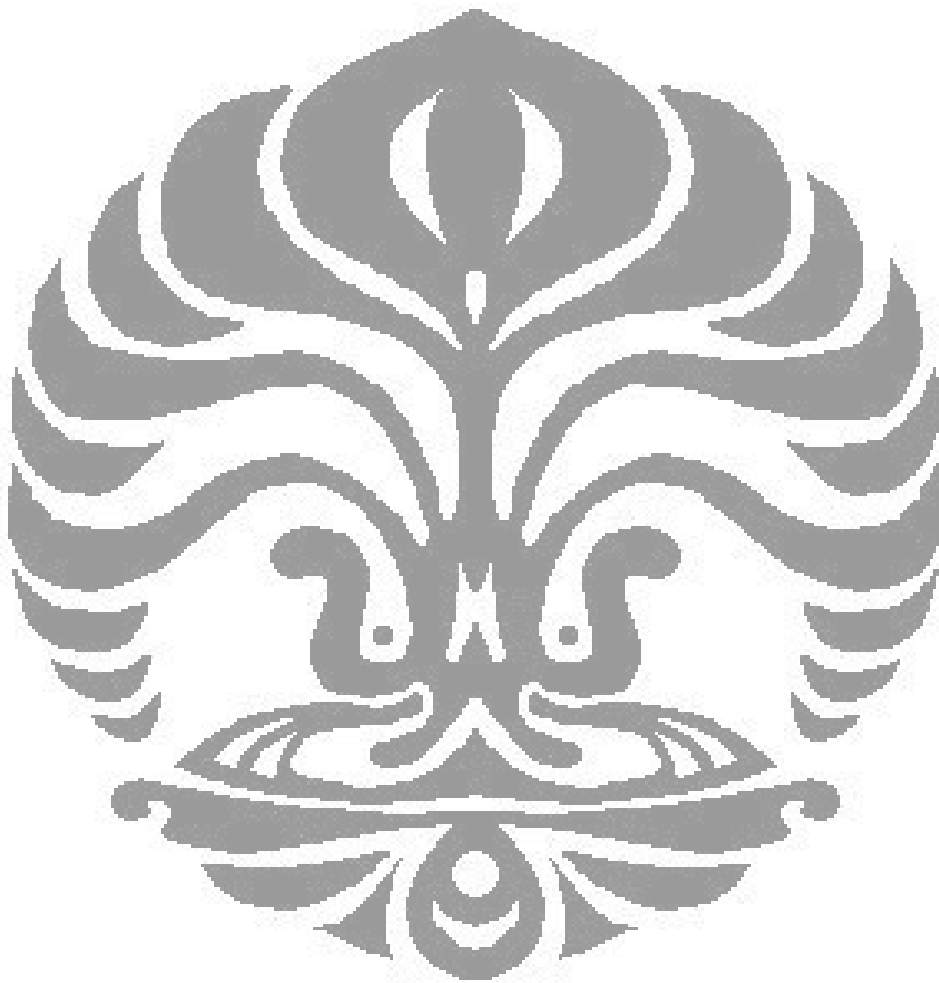
1. Amonia dapat digunakan sebagai *precipitating agent* untuk deposisi katalis nikel menggunakan metode presipitasi dengan perbandingan jumlah mol 1 : 1 (mol nikel : mol amonia).
2. Waktu deposisi berpengaruh terhadap *loading* katalis yang dihasilkan. Waktu deposisi 12 jam menghasilkan *loading* sebesar 0,0285 g Ni/g CF dengan *loading* yang tidak merata, ukuran kristal yang kecil, dan lapisan katalis yang tipis. Sedangkan waktu deposisi 24 jam menghasilkan *loading* sebesar 0,0448 g Ni/g CF dengan *loading* yang lebih merata, ukuran kristal yang lebih besar, dan lapisan katalis yang lebih tebal.
3. Ukuran kristal dan ketebalan lapisan katalis dapat mempengaruhi pertumbuhan nanokarbon.
4. Penumbuhan nanokarbon pada *carbon foam* melalui reaksi dekomposisi metana pada suhu 500°C selama 5 jam dengan laju alir metana 20 ml/menit dapat meningkatkan luas permukaan *carbon foam* hingga 11,55 m²/g.

5.2. SARAN

Untuk penelitian selanjutnya, peneliti menyarankan hal berikut:

1. Menggunakan prekursor dengan jumlah yang lebih sedikit dan waktu deposisi yang lebih singkat sehingga ukuran kristal dan ketebalan lapisan katalis menjadi lebih kecil.
2. Meningkatkan laju alir gas metana atau waktu reaksi sehingga penumbuhan nanokarbon menjadi lebih optimal.
3. Melakukan perhitungan secara stoikiometri untuk menentukan kebutuhan volume gas hidrogen sehingga reduksi yang dilakukan menjadi optimal.

4. Melakukan kalsinasi untuk mencegah *temperature shock* sehingga substrat *carbon foam* tidak mudah rontok.
5. Menggunakan karakterisasi SEM dengan teknik pengambilan gambar yang lebih baik sehingga kualitas gambar yang diperoleh juga lebih baik.



DAFTAR PUSTAKA

- Anonim. Fullerenes. (2001) [diakses pada 20 November 2010]. Tersedia di:
<http://www.nano-c.com/fullerenes>.
- Anonim. Nanocarbon. [diakses pada 8 Desember 2010]. Tersedia di:
<http://www.complexphysics.org/Projects/Nanocarbon.html>.
- Baker, R. T. K.; Barber, M. A.; Harris, P. S.; Feates, F. S.; Waite, R. J. (1972).
Nucleation and Growth of Carbon Deposits from the Nickel Catalyzed
Decomposition of Acetylene. *J. Catal.*, Vol.26, 51.
- Chen, J., Li Y, Ma Y, Qin Y, Chang L. (2001). Formation of bamboo-shaped
carbon filaments and dependence of their morphology on catalyst
composition and reaction conditions. *Carbon*, 1467-1475.
- Chen, X., et al. (2004). Electrochemical Hydrogen Storage of Carbon Nanotubes
and Carbon Nanofibers. *International Journal of Hydrogen Energy*, 743-
748.
- Chinthaginjala, J. K., K. Shesan, L. Lefferts. (2007). Preparation and Application
of Carbon-Nanofiber Based Microstructured Materials as Catalyst
Supports. *Ind. Eng. Chem. Res.*, Vol.46, 3968-3978.
- Cordier, A. E. (2005). In situ CCVD synthesis of carbon nanotubes within a
commercial ceramic. *Journal of Materials Chemistry*, 4041–4050.
- 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. (2000). Effective Catalysts for Direct of Methane to Produce Hydrogen and Filamentous Carbon. *Applied Catalysis A: General* 201, 61 – 71.
- 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*, 109-115.
- Jarrah, N., J. G. van Ommen, L. Lefferts. (2003). *Catal. Today*, 815–824.
- Kristiansen, Kai de Lange. (2004). Nanocarbon: Properties and Application. Trial Lecture. Universitas Osloensis.
- Kuznetsov, VL. (2001). Mechanism of carbon filaments and nanotubes formation on metal catalysts. Bereskov Institute of Catalysis, Lavrentieva 5, Novosibirsk, 630090 Rusia.
- McWilliams, Andrew. Catalysts for Environmental and Energy Applications. (2010) [diakses pada 13 November 2010]. Tersedia di: <http://www.bccresearch.com/report/CHM020D.html>.
- Michio, Inagaki, Katsumi Kaneko, Takashi Nishizawa. (2004). Nanocarbons – Recent Research in Japan. *Carbon*, 42:1401-1417.
- Nasikin, M., Bambang Heru S. (2010). Katalisis Heterogen. Depok: UI-Press.
- Paramitha, S. S. (2009). Aplikasi pengadukan ultrasonik dan pemanasan *microwave* untuk memurnikan karbon nanotube yang disintesis dengan metode dekomposisi katalitik metana. Skripsi. Departemen Teknik Kimia FTUI.

- Qian, D. Wagner GJ, Liu WK. (2002). Mechanics of carbon nanotubes. *Applied Mechanics Rev*, 495-533.
- Richardson, JT. (1989). *Principle of catalyst development (Fundamental and applied catalysis)*. New York: Plenum Press.
- Takenaka S, Ogihara H, Yamanaka I, Otsuka K. (2001). Decomposition of methane over supported-Ni catalysts: effects of the supports on the catalytic lifetime. *Applied Catalysis A*, 101-110.
- Toma'nek, D. (2002). Hierarchical Assembly of Nanostructured Carbon Foam. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 189-195.
- Umemoto, K. S. (2001). Carbon foam: Spanning the phase space between graphite and diamond. *Physical Review B*. Vol. 64, 193409.
- Wenmakers, P. W. (2008). "Hairy Foam": carbon nanofibers grown on solid carbon foam. A fully accessible, high surface area, graphitic catalyst support. *Journal of Materials Chemistry*, 2426-2436.
- Wijaya, F. (2008). Pengaruh perlakuan ultrasonik pada preparasi katalis Ni-Cu-Al₂O₃ dengan metode kopresipitasi terhadap kualitas karbon nanotube pada reaksi dekomposisi katalitik metana. Skripsi. Departemen Teknik Kimia FTUI.
- Yulianti, I. (2008). Perancangan reaktor katalis terstruktur untuk produksi karbon nanotube dan hidrogen melalui proses dekomposisi katalitik metana. Skripsi. Departemen Teknik Kimia FTUI.

LAMPIRAN A. PERHITUNGAN KEBUTUHAN AMONIA

A.1 Perhitungan Secara Stoikiometri

Jumlah mol urea yang ditambahkan adalah 3 kali jumlah mol nikel yang digunakan sebagai prekursor. Mol nikel dapat dihitung sebagai berikut.

$$\text{Berat carbon foam} = 0,1785 \text{ g}$$

Dengan perbandingan berat prekursor = 20 g Ni/g CF, didapat

$$\text{Berat Ni} = 20 \times 0,1785 \text{ g} = 3,57 \text{ g}$$

Sehingga mol Ni:

$$\text{mol Ni} = \frac{3,57 \text{ g}}{58,69 \text{ g/mol}} = 0,0608 \text{ mol}$$

dan mol urea:

$$\text{mol urea} = 3 \times \text{mol Ni} = 3 \times 0,06 \text{ mol} = 0,18 \text{ mol}$$

Di dalam air, urea terdisosiasi menjadi:



Dengan derajat disosiasi sebesar $7,94 \times 10^{-1}$, dapat dihitung jumlah mol yang terdisosiasi sebagai NH_4^+ dan didapat hasilnya sebesar $6,17 \times 10^{-3}$ mol.

Sedangkan amonia terdisosiasi menjadi:



Dengan kebutuhan jumlah mol NH_4^+ yang sama, maka didapat kebutuhan jumlah amonia sebesar dua kali jumlah mol NH_4^+ , yaitu 0,01234 mol.

Sehingga volume amonia yang dibutuhkan dapat dihitung berdasarkan densitasnya, yaitu:

$$\rho = \frac{\text{massa}}{\text{volume}}$$
$$\text{volume} = \frac{\text{massa}}{\rho} = \frac{\text{mol} \times \text{Mr}}{\rho} = \frac{0,01234 \text{ mol} \times 17,031 \text{ g/mol}}{0,91 \text{ g/ml}} = 0,23 \text{ ml}$$

Sehingga, jumlah ammonia yang ditambahkan pada deposisi pertama sebanyak 0,23 ml.

A.2 Perhitungan Kebutuhan Amonia hingga Terbentuk Endapan Pertama

Karena dengan menggunakan perhitungan secara stoikiometri belum terbentuk endapan, maka untuk deposisi kedua akan ditambahkan sejumlah amonia dengan konsentrasi yang ditentukan sebelumnya yaitu 2,14 M. konsentrasi tersebut didapat dari perhitungan sebagai berikut:

$$M = \frac{\text{vol. amonia} \times \rho}{M_r \times \text{vol. larutan}}$$

dengan jumlah amonia yang digunakan = 2 ml dalam 50 ml air.

Endapan pertama didapat setelah jumlah amonia 2,14 M yang ditambahkan sebanyak 23 ml. dari situ, dapat dihitung mol amonia sebagai berikut:

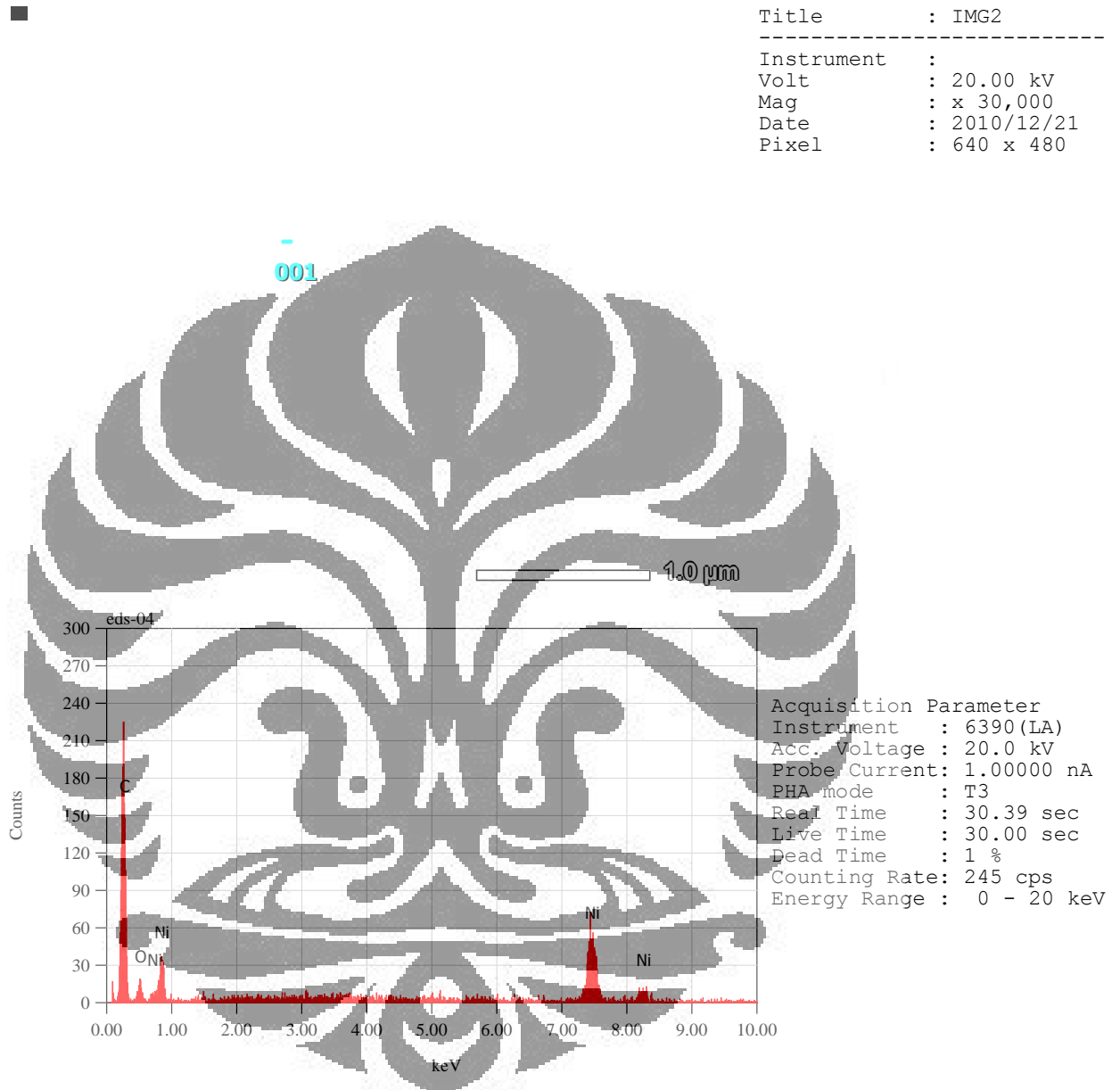
$$M = \frac{\text{mol}}{\text{volume}}$$

$$\text{mol} = M \times \text{volume} = 2,14 \text{ mol/L} \times 0,023 \text{ L} = \mathbf{0,05 \text{ mol}}$$

Sehingga, total mol amonia yang ditambahkan dari deposisi pertama hingga kedua adalah sebesar 0,0612 mol. Sehingga, didapat perbandingan mol amonia terhadap mol nikel sebagai berikut:

$$\frac{\text{mol amonia}}{\text{mol nikel}} = \frac{0,0612}{0,0608} = \mathbf{1,01}$$

**LAMPIRAN B. HASIL KARAKTERISASI KOMPOSIT NANOKARBON-
CARBON FOAM MENGGUNAKAN SEM EDX**



ZAF Method Standardless Quantitative Analysis (Oxide)

Fitting Coefficient : 0.6512

Total Oxide : 24.0

Element	(keV)	mass%	Error%	Mol%	Compound	mass%	Cation	K
C K	0.277	62.04	0.31	91.04	C	62.04	0.00	42.1086
O		8.13						
Ni K	7.471	29.83	1.89	8.96	NiO	37.96	24.00	57.8914
Total		100.00		100.00		100.00	24.00	

LAMPIRAN C. HASIL KARAKTERISASI BET

C.1 Hasil Karakterisasi BET untuk *Carbon Foam Kosong*

Date: 12/16/2010

Page 1

Quantachrome Corporation
Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report
Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23

Sample ID	Karbon foam kosong				
Description	Karin				
Comments					
Sample Weight	0.3990 g				
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150.0 °C	Operator	.jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molecule	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	40.4 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3	End of Run	12/01/2010 12:51
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2	File Name	AS965597.RAW
Station #	5	Bath Temp.	77.40	PC SW Version	Pre-1.20

AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY

SURFACE AREA DATA

Multipoint BET.....	0.000E+00	m ² /g
Langmuir Surface Area.....	8.322E+00	m ² /g
t-Method External Surface Area.....	-9.103E-01	m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	9.103E-01	m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	5.019E+33	m ² /g

PORE VOLUME DATA

t-Method Micro Pore Volume.....	2.639E-04	cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	5.019E+33	cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	0.000E+00	cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	0.000E+00	cc/g

PORE SIZE DATA

DR Method Micro Pore Width.....	1.004E+35	Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.920E+01	Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.098E+01	Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	1.947E+01	Å

DATA REDUCTION PARAMETERS

Thermal Transpiration : OFF
Last Po Acquired 769.30 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.

BJH/DH Moving Average Size : 1

Interaction Constant (K) 2.9600 nm³ x kJ/mol

C.2 Hasil Karakterisasi BET untuk Komposit Nanokarbon-Carbon Foam

Date: 12/30/2010

Page 1

Quantachrome Corporation
Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report
Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23

Sample ID	CF				
Description	Karin				
Comments					
Sample Weight	0.0479 g	Outgas Temp	150.0 °C	Operator	.jajat
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	42.1 min
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molecule	P/Po Toler	3	End of Run	12/30/2010 12:2
NonIdeality	6.580E-05	Equil Time	2	File Name	AS965490.RAW
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Bath Temp.	77.40	PC SW Version	Pre-1.20
Station #	5				

AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY

SURFACE AREA DATA

Multipoint BET.....	1.155E+01	m ² /g
Langmuir Surface Area.....	4.146E+01	m ² /g
t-Method External Surface Area.....	1.155E+01	m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	0.000E+00	m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	1.374E+01	m ² /g

PORE VOLUME DATA

t-Method Micro Pore Volume.....	0.000E+00	cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	4.884E-03	cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	2.348E-03	cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	2.449E-03	cc/g

PORE SIZE DATA

DR Method Micro Pore Width.....	2.282E+02	Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.920E+01	Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.573E+01	Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.971E+01	Å

DATA REDUCTION PARAMETERS

Thermal Transpiration : OFF
Last Po. Acquired 765.49 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.

BJH/DR Moving Average Size = 1

Interaction Constant (K) 2.9600 nm³ x kJ/mol