



UNIVERSITAS INDONESIA

**PENGARUH KONDISI OPERASI TERHADAP
PERTUMBUHAN NANOKARBON MELALUI
DEKOMPOSISI KATALITIK METANA**

SKRIPSI

**WILDA YUNI PARINDURI
0806368225**

**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JUNI 2011**



UNIVERSITAS INDONESIA

**PENGARUH KONDISI OPERASI TERHADAP
PERTUMBUHAN NANOKARBON MELALUI
DEKOMPOSISI KATALITIK METANA**

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana

**WILDA YUNI PARINDURI
0806368225**

**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JUNI 2011**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

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

Nama : Wilda Yuni Parinduri

NPM : 0806368225

Tanda Tangan :

Tanggal : 27 Juni 2011

HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh

Nama : Wilda Yuni Parinduri

NPM : 0806368225

Program Studi : Teknik Kimia

Judul Skripsi : Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Pertumbuhan Nanokarbon Melalui Dekomposisi Katalitik Metana

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

DEWAN PENGUJI

Pembimbing I : Ir. Praswasti PDK Wulan, MT ()

Penguji I : Dr. Ir. Asep Handaya Saputra, M.Eng ()

Penguji II : Ir. Dijan Supramono, M.Sc ()

Penguji III : Prof. Dr. Ir. Slamet, MT ()

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 27 Juni 2011

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur penulis panjatkan kehadiran Tuhan Yang Maha Esa atas rahmat dan karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan skripsi ini. Skripsi ini dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Teknik Program Studi Teknik Kimia pada Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Judul skripsi ini adalah *Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Pertumbuhan Nanokarbon Melalui Dekomposisi Katalitik Metana*.

Pada saat penyusunan skripsi ini penulis mendapatkan bimbingan dan bantuan dari berbagai pihak, untuk itu pada kesempatan ini penulis sampaikan rasa terima kasih kepada:

1. Ibu Ir. Praswasti PDK Wulan, MT. selaku dosen pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga dan pikiran untuk mengarahkan saya dalam penyusunan skripsi ini;
2. Bapak Prof. Dr. Ir. Widodo Wahyu Purwanto, DEA selaku Ketua Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.
3. Keluarga penulis: Bapak, Ibu, kakak dan adik, atas pengertian serta dukungan moral dan materialnya yang tak terhingga.
4. Kang Jajat dan Mang Ijal selaku Teknisi laboratorium yang telah membantu saya secara teknis
5. Teh anggi, Gondang, Teh mayang, Elin dan teman-teman Ekstensi Teknik Kimia 2008 serta sahabat yang telah membantu, baik secara material maupun spiritual.

Penulis menyadari terdapat ketidaksempurnaan dalam makalah ini. Oleh karena itu penulis mengharapkan saran dan kritik yang bersifat membangun dari berbagai pihak demi kebaikan bersama. Akhir kata penulis mengharapkan semoga skripsi ini dapat memberikan manfaat kepada berbagai pihak yang berkepentingan.

Penulis

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

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

Nama : Wilda Yuni Parinduri

NPM : 0806368225

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 Noneklusif** (*Non-exclusive Royalty-Free Right*) atas karya ilmiah saya yang berjudul :

“Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Pertumbuhan Nanokarbon
Melalui Dekomposisi Katalitik Metana”

Beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneklusif itu 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 : 27 Juni 2011

Yang Menyatakan,

(Wilda Yuni Parinduri)

ABSTRAK

Nama : Wilda Yuni Parinduri
Program Studi : Teknik Kimia
Judul : Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Pertumbuhan Nanokarbon Melalui Dekomposisi Katalitik Metana

Nanokarbon adalah material karbon yang diproduksi dengan struktur dan ukuran nanometer yang dapat digunakan untuk membuat nanomaterial bagi peranti mikroelektronik, produk makanan, obat-obatan dan berbagai bidang lainnya. Dekomposisi katalitik metana merupakan salah satu sintesis nanokarbon dengan metode CVD (*Chemical Vapour Deposition*) yang cukup ekonomis untuk menghasilkan nanokarbon. Optimasi proses diperlukan untuk menghasilkan nanokarbon yang komersial dan berkualitas baik. Penelitian ini dilakukan menggunakan katalis Ni-Cu-Al pada komposisi 2:1:1 yang dipreparasi dengan metode kopresipitasi menggunakan presipitan larutan sodium karbonat. Katalis direaksikan dengan metana pada kondisi operasi yang divariasikan yaitu suhu reaksi berada pada rentang 500⁰C-750⁰C, waktu reaksi pada rentang 1-60 menit, dan laju alir metana pada 40 mL/mnt - 120 mL/mnt. Produk dikarakterisasi dengan SEM, TEM dan BET.

Berdasarkan hasil penelitian, diperoleh kondisi optimum untuk memperoleh nanokarbon dengan morfologi yang baik berada pada waktu reaksi 20 menit dengan laju alir 120 mL/mnt dan suhu reaksi 700⁰C pada tekanan atmosferik. Bentuk nano karbon yang terbentuk adalah MWNT berdiameter 54-59 nm. Setelah direaksikan selama 10 jam, ternyata katalis masih terlihat stabil. Aktivitas katalis meningkat 5 menit pertama kemudian menurun secara drastis hingga aktivitas relatif stabil pada rentang 1-10 jam.

Kata kunci :
katalis Ni-Cu-Al, kopresipitasi, dekomposisi katalitik metana, kondisi optimum, nanokarbon.

ABSTRACT

Name : Wilda Yuni Parinduri
Study Program : Chemical Engineering
Title : Effect Of Operating Conditions On Nanocarbon Growth by
Catalytic Decomposition of Methane

Nanocarbon is a carbon material produced by the nanometer structure and size that can be used to make nanomaterials for microelectronics devices, food products, medicines etc. Catalytic decomposition of methane is one of the economic methods for synthesis nanocarbon by CVD (Chemical Vapour Deposition) to produce nanocarbon. Optimization of the process required to produce a commercial nanocarbon and good quality. The research was conducted using the catalyst Ni-Cu-Al in composition 2:1:1 prepared by coprecipitation method using a solution of sodium carbonate as presipitan. The catalyst is reacted with methane which the operating conditions of the reaction temperature was varied in the range of 500⁰C-750⁰C, reaction time on the range of 1-60 minutes, and the methane flow rate at 40 mL / min - 120 mL / min. Products were characterized by SEM, TEM and BET.

Based on results of this research, optimum conditions to obtain nanocarbon with good morphology is at the 20 minutes reaction times with a flow rate of 120 mL / min and the reaction temperature 700⁰C at atmospheric pressure. Nanocarbon formed is MWNT with diameter 54-59 nm. After treated for 10 hours, catalyst still looks stable. Catalytic activity increases for 5 minutes and then decreased drastically until the activity is relatively stable in the range of 1-10 hours.

Keywords:

Ni-Cu-Al catalyst, coprecipitation, catalytic decomposition of methane, optimum condition, nanocarbon.

DAFTAR ISI

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN	iii
KATA PENGANTAR	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI.....	v
ABSTRAK	vi
ABSTRACT.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xiv
DAFTAR SINGKATAN	xv
BAB 1	
PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah.....	3
1.3 Tujuan	3
1.4 Batasan Masalah	3
1.5 Sistematika Penulisan	4
BAB 2	
TINJAUAN PUSTAKA	5
2.1 Tinjauan Umum Dekomposisi Katalitik Metana.....	5
2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana.....	6
2.2.1 Hidrogen.....	6
2.2.2 Nanokarbon.....	7
2.3 Aplikasi Nanokarbon	11
2.4 Sintesis Nanokarbon	13
2.5 Katalis	15
2.5.1 Pembagian Katalis.....	16
2.5.1 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Metana.....	18
2.6 Teknik Preparasi Katalis dengan Metode Kopresipitasi	20
2.7 Mekanisme Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	22

2.8	Pengaruh Kondisi Operasi terhadap Pertumbuhan Nano Karbon.....	26
2.8.1	Suhu Reaksi.....	26
2.8.2	Waktu Reaksi	28
2.8.3	Tekanan Operasi.....	29
2.8.4	Laju Alir Umpan	30
2.9	Metode Karakterisasi	30
2.9.1	EM (Electron Microscopy)	30
2.9.2	BET	31
2.10	State Of The Art Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Karakteristik Nanokarbon.....	32
BAB 3		
METODE PENELITIAN.....		35
3.1	Tahap Penelitian.....	35
3.2	Peralatan dan Bahan Penelitian.....	36
3.2.1	Peralatan yang dipergunakan dalam penelitian.....	36
3.2.2	Bahan yang digunakan dalam penelitian.....	37
3.3	Prosedur Penelitian	37
3.3.1	Preparasi Katalis.....	37
3.3.2	Karakterisasi Katalis	39
3.3.3	Set-Up Rangkaian Peralatan	42
3.3.4	Kalibrasi Alat	43
3.3.5	Uji Kinerja Katalis	44
3.4	Teknik Pengumpulan Data.....	44
3.5	Pengolahan Data	45
BAB 4		
HASIL DAN PEMBAHASAN.....		46
4.1	Preparasi dan Karakterisasi Katalis	46
4.1.1	Karakterisasi XRF dan AAS	48
4.1.2	Karakterisasi BET	50
4.1.3	Karakterisasi SEM	50
4.2	Aktivitas dan Stabilitas Katalis	53
4.3	Pengaruh Kondisi Operasi	57
4.3.1	Pengaruh Diameter Partikel Katalis	57
4.3.2	Pengaruh Laju Alir Metana.....	58
4.3.3	Pengaruh Waktu Reaksi	63
4.3.4	Pengaruh Suhu Reaksi	67

BAB 5

KESIMPULAN.....	76
5.1 KESIMPULAN.....	76
5.2 SARAN.....	76
DAFTAR PUSTAKA	77
LAMPIRAN.....	80



DAFTAR GAMBAR

Gambar 2. 1 <i>Armchair</i> , <i>zigzag</i> , dan <i>chiral</i> SWNT dan penutupnya sesuai <i>fullerene</i> yang bersesuaian (Daenen,2003).	8
Gambar 2. 2 MWNT (Ijima,2002)	8
Gambar 2. 3 Scanning electron micrographs of (a) <i>aligned multi-wall carbon nanotube</i> (b) <i>single-wall carbon nanotubes</i> yang diproduksi dengan metode CVD (Shaffer,2009)	9
Gambar 2. 4 Beragam struktur nanokarbon	10
Gambar 2. 5 CNF terbentuk bersama dengan <i>carbon nanoball</i>	10
Gambar 2. 6 Perbandingan diameter terhadap nanokarbon yang diperoleh (Shaffer,2009)	11
Gambar 2. 7 Skema <i>arc-discharge</i>	13
Gambar 2. 8 Skema peralatan <i>Laser Ablation</i>	14
Gambar 2. 9 kurva konversi metana pada katalis Ni-Cu-Al (Chen,2004)	20
Gambar 2. 10 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana (Snoeck,1997)	22
Gambar 2. 11 Mekanisme pembentukan nukleus pada pertumbuhan.....	23
Gambar 2. 12 mekanisme pertumbuhan karbon nanotubes (He,2007)	24
Gambar 2. 13 (a) Peristiwa di dalam reaktor katalitik dan (b) tahap reaksi katalitik	25
Gambar 2. 14 SEM katalis Ni:Cu:Al-78:6:16 dengan metode kopresipitasi selama	27
Gambar 2. 15 SEM katalis Ni/Al ₂ O ₃ (a) 14 jam reaksi pada 650°C, (b) 13 jam reaksi pada 600 °C, (c) 8 jam reaksi pada 550 °C dan (d) 16 jam reaksi pada 500°C (Rahman,2006)	29
Gambar 3. 1 Diagram Alir Penelitian.....	35
Gambar 3. 2 Diagram Alir Preparasi Katalis dengan Metode Kopresipitasi	38
Gambar 3. 3 Alat <i>X-Ray Fluorescence</i> (XRF)	39
Gambar 3. 4 Alat <i>X-Ray Diffraction</i> (XRD)	40
Gambar 3. 5 Alat <i>Transmission Electron Microscopy</i> (TEM).....	41
Gambar 3. 6 Alat BET (<i>Brunauer, Emmett, dan Teller</i>).....	42
Gambar 3. 7 Rangkaian peralatan penelitian	42
Gambar 3. 8 Reaktor Mikro dengan Mikrobalance	43
Gambar 3. 9 Reaktor yang terpasang dalam <i>furnace</i>	43
Gambar 4. 1 Larutan Katalis	47
Gambar 4. 2 (a) katalis setelah pengeringan; (b) katalis setelah kalsinasi kemudian dihaluskan pada diameter partikel 0,125mm; (c) katalis yang telah direaksikan Metana.	48
Gambar 4. 3 Titik Pengambilan SEM	50
Gambar 4. 4 Hasil SEM katalis pada titik area (a) 1, (b) 2, dan (c) 3.....	51
Gambar 4. 5 Hasil SEM katalis pada titik area 2 dengan perbesaran (a)10.000x, (b)35.000x dan (c)50.000x.....	52
Gambar 4. 6 Grafik EDS katalis pada titik area 2.....	52
Gambar 4. 7 Pengaruh waktu terhadap stabilitas dan aktivitas katalis	54
Gambar 4. 8 Wadah katalis dalam reaktor (<i>holder</i>) berisi (a) 0,01g <i>fresh catalyst</i> dan (b) produk nano karbon setelah 10 jam direaksikan metana.	55

Gambar 4. 9 SEM produk nano karbon pada waktu reaksi (a) 1jam & (b) 10 jam.....	55
Gambar 4. 10 SEM-EDS nanokarbon pada kondisi waktu reaksi 1 jam dan 10 jam.	56
Gambar 4. 11 Hubungan antara diameter partikel katalis terhadap konversi metana.....	57
Gambar 4. 12 Hubungan perubahan massa spesifik karbon terhadap waktu reaksi.....	58
Gambar 4. 13 Hubungan laju pembentukan karbon terhadap waktu reaksi.	59
Gambar 4. 14 SEM dari morfologi CNT pada variasi laju (a) 40, (b) 80 dan (c)120mL/mnt.....	60
Gambar 4. 15 Hubungan antara diameter CNT terhadap laju reaksi.	61
Gambar 4. 16 Hubungan yield karbon dan konversi metana terhadap laju alir....	62
Gambar 4. 17 Morfologi CNT dengan variasi waktu (a)1menit, (b)3menit, (c)5menit, (d)10menit, (e)20 menit, (f)40menit, dan(g)1jam.....	64
Gambar 4. 18 Diameter dalam CNT pada variasi waktu reaksi.....	65
Gambar 4. 19 Hasil SEM-Mapping pada variasi waktu reaksi (a)3menit,(b)20menit dan (c) 60 menit	66
Gambar 4. 20 Konversi metana pada variasi suhu reaksi.	67
Gambar 4. 21 SEM dan TEM produk nanokarbon pada variasi suhu reaksi (a)500 ⁰ C(titik1),(b)550 ⁰ C(titik1),(c)600 ⁰ C(titik3),(d)650 ⁰ C(titik1),(e)700 ⁰ C(titik1),(f)750 ⁰ C (titik 3).....	69
Gambar 4. 22 Hasil SEM-Mapping pada variasi suhu reaksi (a)550 ⁰ C,(b)700 ⁰ C dan (c) 750 ⁰ C.....	71
Gambar 4. 23 TEM produk nano karbon pada waktu reaksi 3 menit dengan variasi suhu reaksi (a)500 ⁰ C, (b)550 ⁰ C, (c)600 ⁰ C, (d)650 ⁰ C, (e)700 ⁰ C dan (f)750 ⁰ C.....	72
Gambar 4. 24 TEM produk CNF diikuti dengan <i>Carbon Nanoball</i> pada 1013K (Chen,2004).....	73
Gambar 4. 25 Profil diameter CNT terhadap suhu reaksi.....	74

DAFTAR TABEL

Tabel 2. 1 Perbandingan Karakteristik Katalis Heterogen dengan Homogen	17
Tabel 2. 2 Produk yang diperoleh pada suhu reaksi dan katalis tertentu	28
Tabel 2. 3 State Of The Art pengaruh kondisi operasi terhadap karakteristik nanokarbon.....	32
Tabel 3. 1 Alat-alat yang digunakan untuk preparasi katalis	36
Tabel 3. 2 Matriks Prosedur Penelitian	44
Tabel 4. 1 Hasil karakterisasi menggunakan <i>X-Ray Flourescence</i> (XRF)	49
Tabel 4. 2 Hasil karakterisasi menggunakan AAS.....	49
Tabel 4. 3 Hasil EDS katalis pada ketiga titik area.....	51
Tabel 4. 4 Nilai konversi metana dan yield karbon pada variasi laju alir metana	62
Tabel 4. 5 Perubahan massa spesifik karbon dan laju pembentukan karbon dengan variasi waktu reaksi.	63
Tabel 4. 6 SEM-EDS nano karbon dengan variasi suhu reaksi.	70
Tabel 4. 7 Diameter CNT pada waktu reaksi 3 menit.....	74
Tabel 4. 8 Hasil BET pada variasi temperatur reaksi dengan waktu reaksi 3 menit.....	75

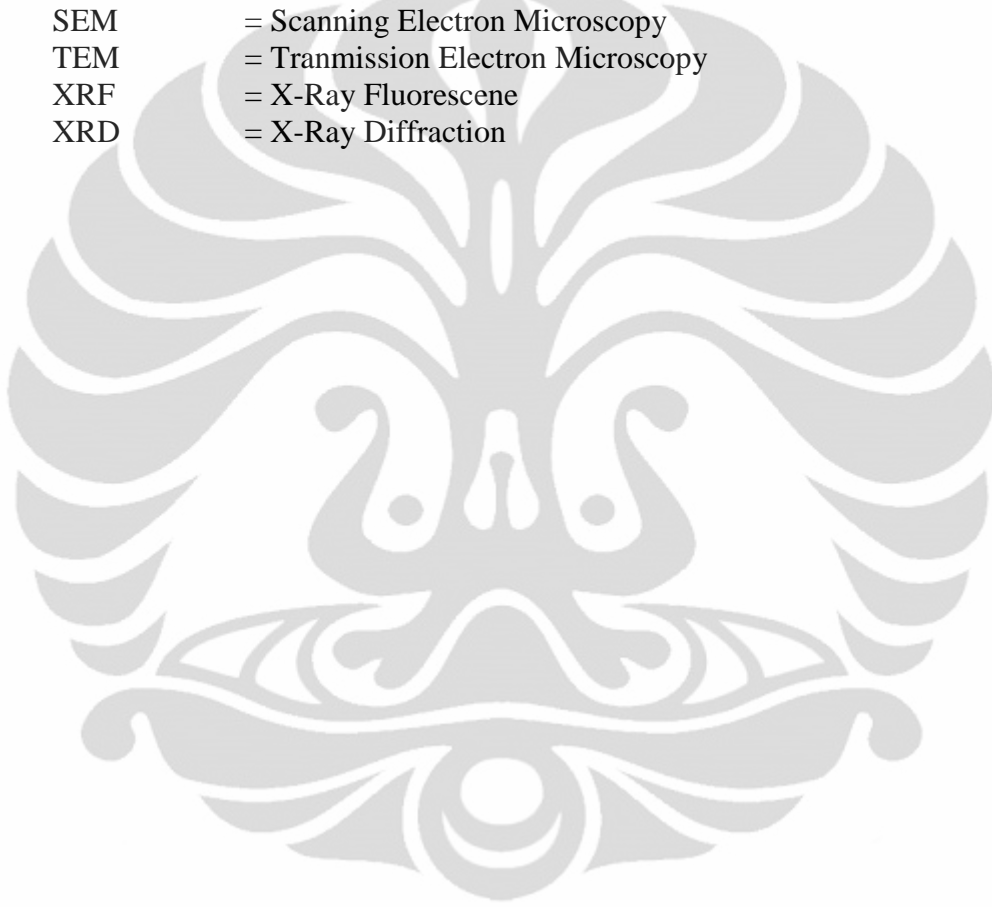
DAFTAR LAMPIRAN

LAMPIRAN A. Karakterisasi katalis	80
LAMPIRAN B. Kalibrasi microbalance	82
LAMPIRAN C. Perhitungan data microbalance untuk menentukan stabilitas dan aktivitas katali.....	83
LAMPIRAN D. Perhitungan diameter nanokarbon	85
LAMPIRAN E. Hasil perhitungan menggunakan GC pada variasi suhu reaksi...86	
LAMPIRAN F. Hasil karakterisasi nanokarbon menggunakan BET.....	90



DAFTAR SINGKATAN

AAS	= Atomic Absorption Spectroscopy
BET	= Brunauer, Emmet & Teller
CNT	= Carbon Nanotube
CNF	= Carbon Nanofiber
CVD	= Chemical Vapour Deposition
MDR	= Methane Decomposition Reaction
MWNT	= Multi-walled Nanotube
SEM	= Scanning Electron Microscopy
TEM	= Transmission Electron Microscopy
XRF	= X-Ray Fluorescence
XRD	= X-Ray Diffraction



BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Teknologi nano sudah mulai berkembang sejak 1980-an. Namun, teknologi dalam skala atomik ini belum akrab untuk masyarakat umum (Kompas,2010). Potensi penerapan nanoteknologi sesungguhnya lebih besar, tidak sebatas untuk membuat nanomaterial bagi peranti mikroelektronik, tetapi juga bagi industri lain. Penerapan material nano bukan hanya pada barang teknik, melainkan juga pada produk makanan, obat-obatan, dan kosmetik. Penerapan teknologi nano pada berbagai bidang akan mengubah kehidupan masyarakat modern. Dengan membuat partikel berskala nanometer, kemudian menyusupkannya di antara partikel berukuran mikron, akan dihasilkan jenis material baru bersifat super.

Nanokarbon merupakan salah satu produk nanoteknologi yang efektif dan efisien. Selain ukuran partikel yang berukuran nanometer, struktur dan teksturnya pun berukuran nanometer (Michio, 2004) serta dapat dimanfaatkan dalam aplikasi yang cukup luas. Salah satu metode alternatif yang digunakan untuk menghasilkan nanokarbon adalah dekomposisi katalitik metana dengan sintesis *Chemical Vapor Deposition* (CVD) (Liu et al., 1997; Pan et al., 1998; Zhu et al.,2002). Dekomposisi katalitik metana merupakan metode yang paling menjanjikan untuk industrialisasi karena memiliki keunggulan dari segi biaya lebih ekonomis, lebih mudah dalam preparasi dan mudah dikontrol (Zhan,2007). Selain itu, proses yang dikenal *Methane Decomposition Reaction* (MDR) mampu memproduksi hidrogen dan karbon berukuran nano secara simultan serta bebas produk samping gas CO dan CO₂. Jumlah hidrogen dan nano karbon yang dihasilkan tergantung pada dua faktor yaitu aktivitas dan stabilitas katalis (Chen,2004).

Pemilihan metana sebagai reaktan untuk produksi nanokarbon dan hidrogen adalah karena metana merupakan hidrokarbon dengan perbandingan hidrogen per karbon yang paling tinggi. Selain itu, metana dapat langsung diperoleh dari alam tanpa harus diolah terlebih dahulu, sehingga mengurangi biaya produksi. Gas alam mengandung 75 % metana, 15% etana dan 5% hidrokarbon lainnya seperti propana dan butana. Selain dihasilkan dari gas alam, metana dapat ditemukan pada batu bara. Metana juga dihasilkan dari reaksi dekomposisi tanaman dan hewan oleh bakteri anaerobik.

Penggunaan Metana sebagai bahan bakar mulai ditinggalkan dan dialihkan untuk produksi hidrogen dan nanokarbon melalui reaksi dekomposisi katalitik metana.



Reaksi yang terjadi sangat endotermis, sehingga diperlukan suhu yang sangat tinggi agar tercapai konversi maksimum. Namun pada suhu yang terlalu tinggi dapat mempercepat terjadinya deaktivasi katalis sehingga konversi metana menjadi tidak maksimal (Rahman,2006). Ketahanan deaktivasi mempengaruhi bentuk nanokarbon yang dihasilkan. Semakin baik nanokarbon yang dihasilkan maka pemanfaatannya pun semakin maksimal. Oleh karena itu diperlukan proses yang optimal untuk menghasilkan nanokarbon dengan kualitas terbaik.

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

Nanokarbon berkualitas tinggi berkaitan dengan salah satu parameter reaksi yaitu optimasi proses. Kondisi operasi yang berpengaruh terhadap kualitas nanokarbon diantaranya suhu reaksi, waktu reaksi dan laju alir gas umpan. Tim peneliti nanokarbon di Departemen Teknik Kimia Universitas Indonesia telah

meneliti mengenai nanokarbon namun belum ada yang menganalisis pengaruh kondisi operasi terhadap pertumbuhan nanokarbon. Maka dari itu, dilakukan penelitian mengenai pengaruh kondisi operasi terhadap pertumbuhan nanokarbon melalui dekomposisi katalitik metana. Selain itu, kualitas Nanokarbon dapat ditandai secara visual (morfologi nanokarbon) dengan karakterisasi menggunakan SEM atau TEM.

1.2 Rumusan Masalah

Rumusan masalah penelitian ini berdasarkan latar belakang yang telah dipaparkan di atas adalah bagaimana menentukan pengaruh laju alir umpan, suhu reaksi dan waktu reaksi terhadap kualitas nanokarbon yang dihasilkan melalui metode dekomposisi katalitik metana.

1.3 Tujuan

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mempelajari pengaruh kondisi operasi terhadap pertumbuhan nanokarbon dan mempelajari morfologi nanokarbon dari katalis Ni-Cu-Al yang dipreparasi dengan metode kopresipitasi.

1.4 Batasan Masalah

Penelitian ini membahas mengenai:

1. Reaktor yang digunakan adalah reaktor mikro dengan *microbalance*.
2. Katalis yang digunakan adalah nikel sebagai inti aktif dengan penambahan tembaga sebagai *structural promoter* dan alumina sebagai *textural promoter* dengan target komposisi 2 : 1 : 1 (Ni : Cu : Al).
3. Preparasi katalis dilakukan dengan metode kopresipitasi.
4. Karakterisasi katalis yang dilakukan adalah XRF, AAS, XRD, BET, TEM dan SEM.
5. Penelitian dilakukan pada rentang laju alir umpan sebesar 40-120 mL/menit, waktu reaksi 1-60 menit dan suhu reaksi 500-750°C pada tekanan atmosferik (1 atm).

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 atau prinsip dasar ilmu yang berkaitan dengan penelitian.

BAB III Metode Penelitian

Berisi penjelasan mengenai prosedur penelitian secara umum, termasuk di dalamnya preparasi katalis, produksi nanokarbon dengan variasi laju alir umpan, suhu dan waktu reaksi, uji aktivitas dan stabilitas katalis, karakterisasi terhadap katalis dan produk nanokarbon.

BAB IV Hasil dan Pembahasan

Berisi hasil penelitian dan analisis dari pengaruh variasi laju alir gas umpan, waktu reaksi dan suhu reaksi terhadap kualitas produk nanokarbon yang dihasilkan, data karakterisasi katalis, uji aktivitas katalis, dan karakterisasi produk nanokarbon.

BAB V Kesimpulan

Berisi kesimpulan atas penelitian yang telah dilakukan.

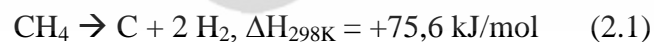
BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Tinjauan Umum Dekomposisi Katalitik Metana

Dekomposisi dapat didefinisikan sebagai perengkahan (*cracking*) yaitu reaksi kimia yang menguraikan atau memutuskan ikatan rantai suatu senyawa menjadi unsur-unsur atau senyawa yang lebih sederhana. Salah satu contohnya adalah dekomposisi metana yaitu pemutusan ikatan H-C dari metana menjadi komponen yang lebih sederhana (hidrogen dan karbon). Dekomposisi metana merupakan hidrokarbon yang paling stabil (hidrokarbon dengan perbandingan hidrogen per karbon yang paling tinggi). 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.

Pada awalnya, Dekomposisi Metana bertujuan untuk menghasilkan hidrogen murni dan memiliki konsentrasi yang besar. Penggunaan hidrogen ini diarahkan untuk sel bahan bakar (*fuel cells*) yang akan menggantikan pembangkit tenaga listrik. Tetapi pada perkembangan selanjutnya, diduga terbentuk nanokarbon yang ditemukan oleh Ijima dengan *Transmission Electron Microscopy* (TEM) pada tahun 1991.

Adapun reaksi dekomposisi metana dirumuskan melalui persamaan sebagai berikut (Villacampa, 2003):



Proses Reaksi Dekomposisi metana bersifat endotermik ditandai dengan nilai ΔH_r^0 yang bernilai positif. Proses pada suhu tinggi akan meningkatkan konversi metana dan produksi hidrogen konsentrasi tinggi bebas COx. Oleh karena itu, untuk menurunkan suhu reaksi perlu ditambahkan katalis yang dapat menurunkan energi aktivasi. (Chen,2004)

Seiring dengan perkembangan penelitian, dekomposisi metana secara umum dapat digolongkan menjadi:

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

2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana

Produk yang diperoleh melalui dekomposisi katalitik metana adalah hidrogen dan nanokarbon.

2.2.1 Hidrogen

Hidrogen merupakan unsur paling melimpah dengan persentase kira-kira 75% dari total massa unsur alam semesta. Hidrogen dianggap sebagai bahan bakar yang paling menjanjikan untuk *fuel cell* atau sel bahan bakar sehingga kebutuhan akan gas hidrogen cukup tinggi. Pemenuhan kebutuhan dapat dipenuhi dari proses konversi dari air, gas alam, dan minyak bumi. Saat ini, hidrogen banyak disintesis dari metana melalui proses *Steam Reforming* (SR). Proses ini terdiri dari beberapa tahap yaitu *Highly endothermic catalytic Steam Reforming of Methane* ($\Delta H^\circ = 206 \text{ kJ/mol}$), *Water-Gas shift reaction* (WGS), Pemisahan campuran H_2/CO_2 (biasanya menggunakan *Pressure Swing Adsorption*, PSA), dan tahap penghilangan sulfur. Pada proses *Steam Reforming* ini dihasilkan CO_2 sebanyak $0.3\text{-}0.4 \text{ m}^3$ per 1 m^3 hidrogen yang dihasilkan. (Josef, 2004; Muradov, 2001)

Seiring perkembangan teknologi maka diterapkan aturan akan kemurnian hidrogen sebagai bahan bakar yang tergantung dari jenis sel bahan bakarnya. Sel bahan bakar yang bekerja pada temperatur tinggi bisa mentoleransi kehadiran CO_x (CO dan CO_2), tetapi sel bahan bakar yang bekerja pada temperatur rendah sulit untuk mentolerir kehadiran CO . Hal ini terjadi karena CO memiliki tendensi untuk teradsorb ke permukaan dari katalis elektrodanya, seperti Pt dan Ru, dan

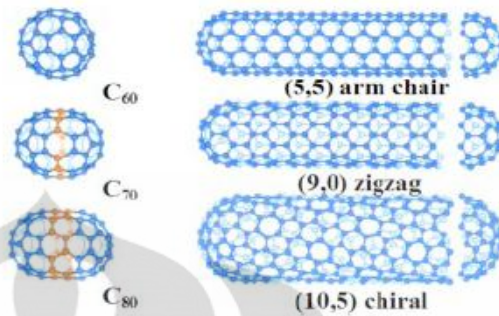
menutupi daerah dimana seharusnya tempat hidrogen bereaksi. Bahkan, CO menjadi racun yang kuat pada skala 10 ppm (Chen, 2004). Alternatif lain memproduksi hidrogen berkualitas tinggi dan mampu mengkonversi unsur karbon menjadi *advance* material karbon nanotube dengan Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana. Pada reaksi ini, untuk menghasilkan hidrogen murni tidak memerlukan pemurnian CO dan tidak menghasilkan CO₂ serta berlangsung pada suhu yang lebih rendah dan lebih hemat energi karena bersifat kurang endotermis dibanding *Steam Reforming*, sehingga lebih ekonomis. (Purwanto,2009).

2.2.2 Nanokarbon

Nanokarbon didefinisikan sebagai material karbon yang diproduksi dengan ukuran dan struktur berskala nanometer. Ada beberapa bentuk susunan unsur karbon diantaranya :

1. *Fullerene* atau *buckminsterfullerene* atau *bucky ball*, yaitu lembaran grafit yang membentuk bola (Gambar 2.4(a)). *Fullerene* terdiri dari karbon-karbon sp² dan sp³. Contohnya adalah C₆₀, yaitu *fullerene* yang terdiri dari 12 cincin pentana dan 20 cincin heksana (Rao, 2001).
2. *Carbon onions* terdiri dari lapisan grafit yang konsentrik seperti bola (*quasi-spherical*) (Gambar 2.4(b)) (He, 2006).
3. Karbon nanofilamen adalah nanokarbon berbenfuk filamen. Secara umum, karbon nanofilamen terdiri dari *Carbon nanofiber* (CNF) dan *Carbon nanotube* (CNT). Bentuk-bentuk nanofilamen secara umum adalah:
 - a. *Carbon nanotube* (CNT) merupakan lembaran grafit yang tersusun dari ikatan heksagonal atom-atom karbon sp² yang digulung membentuk tabung. (Ijima,2002). Berdasarkan jumlah lapisan grafitnya, CNT terbagi menjadi dua jenis, yaitu:
 - *Single-Walled Nanotubes* (SWNT)
SWNT memiliki satu lapisan grafit dengan nanotube karbon berdiameter 0.4 nm-2.5 nm dan panjang beberapa mikrometer sampai beberapa millimeter (Gambar 2.4(c)). Nanotube karbon jenis SWNT memiliki 3 jenis bentuk struktur yang berbeda

antara lain: *armchair type*, *zig-zag type*, dan *chiral type* (Gambar 2.1).

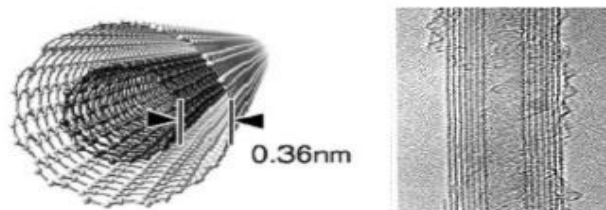


Gambar 2. 1 *Armchair*, *zigzag*, dan *chiral* SWNT dan penutupnya sesuai *fullerene* yang bersesuaian (Daenen,2003).

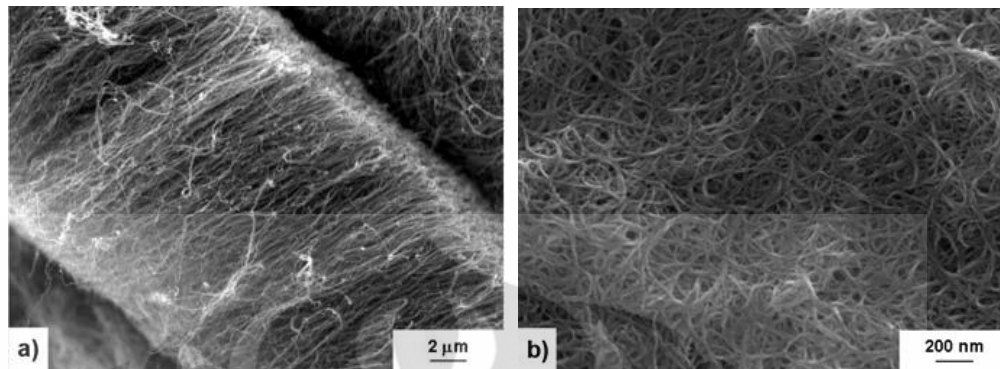
Nanotube karbon jenis SWNT memiliki sifat-sifat yang lebih unggul daripada bentuk MWNT karena diameternya yang sangat kecil dan banyak diaplikasikan sebagai Hydrogen storage untuk fuel cell. Namun untuk memperoleh karbon jenis ini tidaklah mudah. Morfologi SWNT terlihat pada Gambar 2.3(a).

- *Multi-walled carbon nanotubes* (MWNT)

MWNT merupakan SWNT yang tersusun secara aksial konsentrik (Gambar 2.4(d)). Panjang dan struktur MWNT berbeda daripada SWNT, dan juga karakteristiknya berbeda. Jarak antara satu SWNT dengan yang lainnya adalah sekitar 0.36 nm (Gambar 2.2). Lapisan grafit pada MWNT bervariasi jumlahnya dari dua hingga beberapa puluh lapisan, sehingga memungkinkan diameternya mencapai 100 nm (Gambar 2.5). Morfologi MWNT terlihat pada Gambar 2.3(a).

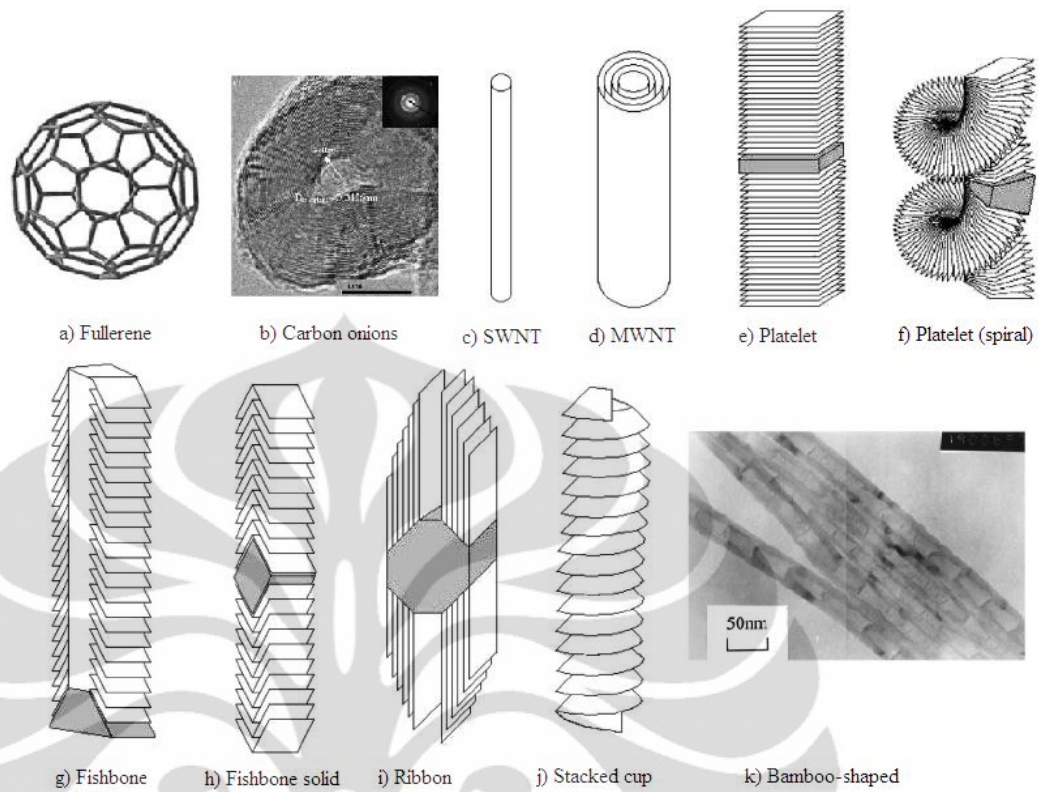


Gambar 2. 2 MWNT (Ijima,2002)



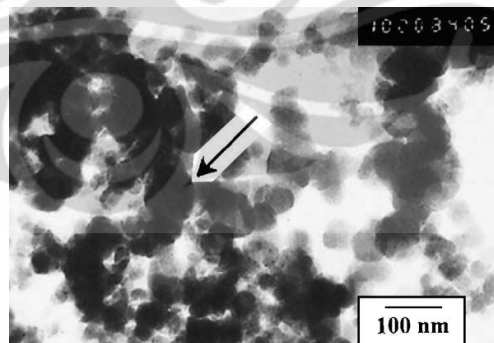
Gambar 2. 3 Scanning electron micrographs of (a) *aligned multi-wall carbon nanotube* (b) *single-wall carbon nanotubes* yang diproduksi dengan metode CVD (Shaffer,2009)

- b. *Platelet carbon nanofiber*, berupa lapisan grafit kecil yang tegak lurus dengan arah aksial fiber (Gambar 2.4(e)). Nanofiber ini harus memiliki hidrogen atau atom lainnya dalam jumlah tak terbatas untuk stabilisasi piringan (*plate*). *Platelet carbon nanofiber* dapat pula berbentuk spiral (Gambar 2.4(f)). Biasanya, partikel padatan berada pada bagian tengah fiber (Gullon, 2006).
- c. *Fishbone carbon nanofibers*, dimana lapisan grafit memiliki kemiringan dari sumbu aksialnya. Seperti platelet, bentuk ini juga membutuhkan hidrogen untuk menstabilkan bagian ujungnya. *Fishbone carbon nanofibers* dapat berinti kosong (*hollow core*) maupun berinti padatan (*solid core*) (Gambar 2.4(g) dan (h)) (Gullon, 2006).
- d. *Ribbon carbon nanofibers* berupa lapisan grafit yang lurus dan tidak tergulung dan posisinya sejajar dengan sumbu aksial fiber (Gambar 2.4(i)) (Gullon, 2006).
- e. *Stacked cup carbon nanofibers* berupa lapisan spiral grafit yang kontinu sepanjang sumbu aksial fiber (Gambar 2.4(j)) (Gullon, 2006).
- f. *Bamboo-shaped carbon filament*, berbentuk seperti bambu, dimana banyak terdapat ruang kosong dan sambungan-sambungan seperti yang terlihat pada Gambar 2.4(k).

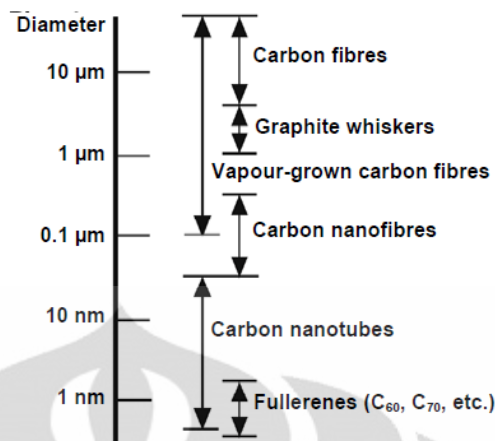


Gambar 2. 4 Beragam struktur nanokarbon
(Rao, 2001; He, 2006; Gullon, 2006)

- g. *Carbon Nano Fiber* terbentuk bersama dengan *Carbon Nanoball* yang merupakan partikel-partikel katalis yang tertutup oleh karbon membentuk seperti bola (Chen,2004).



Gambar 2. 5 CNF terbentuk bersama dengan *carbon nanoball*



Gambar 2. 6 Perbandingan diameter terhadap nanokarbon yang diperoleh (Shaffer,2009)

Produk CNT umumnya dapat terbentuk diantara rentang suhu reaksi 500⁰C-800⁰C (See,2006) dengan diameter berkisar 20-150 nm (Lee and Park,2002) sedangkan CNF dapat terbentuk pada suhu reaksi 500⁰C-700⁰C (Sui,2009) dengan diameter berkisar 50-200 nm (Li,2004). Perbandingan diameter terhadap nanokarbon dapat dilihat pada Gambar 2.6.

2.3 Aplikasi Nanokarbon

Nanokarbon banyak diaplikasikan dan dikembangkan di dunia teknologi, antara lain sebagai berikut :

a. Penyimpan Energi

Bahan-bahan yang mengandung karbon biasanya digunakan sebagai electrode pada *fuel cell*, baterai, dan aplikasi elektrokimia yang lainnya. Salah satu nanokarbon yang memiliki ukuran yang kecil, topologi permukaan yang halus dan hampir sempurna adalah CNT. Hal inilah yang membuat CNT dapat digunakan sebagai penyimpan energi diantaranya hidrogen dan superkapasitor dengan efisiensi yang cukup tinggi.

- Penyimpanan hidrogen

Nanokarbon dapat menyimpan cairan atau gas pada bagian dalamnya melalui efek kapiler karena bentuknya yang berupa silinder kosong dan ukuran diameter yang berskala nanometer. Hidrogen dapat diabsorb dengan dua cara, yaitu dengan cara molekul H_2 berdisosiasi dan hidrogen disimpan dalam bentuk atom (*chemisorptions*) atau dengan cara hidrogen disimpan dalam bentuk molekul (*physisorption*). Jenis nanokarbon yang berdiameter kecil, panjang, dan seragam (SWNT) dianggap sebagai nanokarbon yang berkualitas baik untuk penyimpanan hydrogen.

- Superkapasitor

Superkapasitor memiliki kapasitansi (kemampuan dalam menyimpan muatan listrik) yang tinggi sehingga berpotensi untuk digunakan pada peralatan elektronik. kapasitansi kapasitor dipengaruhi oleh geometri kapasitor, yaitu jarak pisah antar elektroda, luas elektroda, dan permitivitas bahan penyekat. Pada elektroda nanokarbon, kapasitansi yang sangat besar timbul karena jarak pisah antarelektroda berskala nanometer, dan luas permukaan nanokarbon yang besar.

b. Peralatan Elektronik

- *Field emitting devices*

Pada medan listrik tinggi, elektron dapat terekstraksi dari suatu padatan dan arusnya tergantung pada kekuatan medan listrik pada permukaan teremisi dan pada jumlah energi yang dibutuhkan untuk mengeksitasi elektron ke keadaan vakum. *Emitter* yang ideal adalah yang mempunyai diameter berukuran nanometer, berstruktur utuh, konduktivitas listrik tinggi, dan stabilitas kimia yang baik. Penggunaan nanokarbon dalam *field emitting device* adalah untuk *flat panel display*, tabung gas *discharge* pada jaringan telekomunikasi, *electron guns* untuk mikroskop electron dan perangkat memori (*suspended nanotube device architecture*).

c. Nanoprobes and Sensor

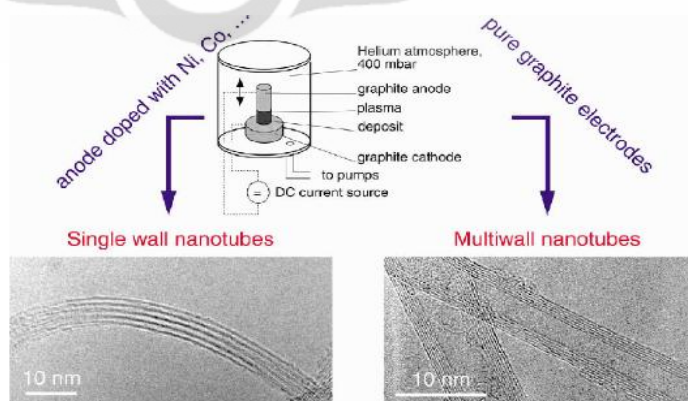
Karakteristik nanokarbon yang fleksibel membuat nanokarbon dapat digunakan sebagai *scanning probe instruments*. Penggunaan nanokarbon akan meningkatkan resolusi instrumen dibandingkan dengan penggunaan Si.

2.4 Sintesis Nanokarbon

Sintesis Nanokarbon secara umum dapat dilakukan dengan 3 teknik, yaitu (See dan Harris,2007) :

a. Arc-Discharge

Metode ini merupakan metode yang paling sederhana jika dibandingkan dengan metode yang lain. Prosesnya cukup singkat, yaitu mengalirkan arus listrik searah melewati 2 elektrode grafit dengan jarak yang dekat (<1 mm) di dalam vesel yang berisi gas inert seperti argon atau helium dan biasanya dilakukan pada tekanan antara 50-700 mbar. Arus listrik langsung (antara 50 dan 120 A) yang diperoleh dari *driving potential* ~30 V dialirkan sehingga menghasilkan plasma bersuhu tinggi (>3000 °C) diantara 2 elektroda. Pada bagian plasma interelektroda, elektroda karbon menyublim dan terkondensasi dengan cepat membentuk nanokarbon. Meskipun kelihatannya sederhana, metode *arc-discharge* tidak bernilai ekonomis, karena grafit yang digunakan merupakan material yang bernilai tinggi, di samping itu diperlukan pemurnian produk dari grafit.



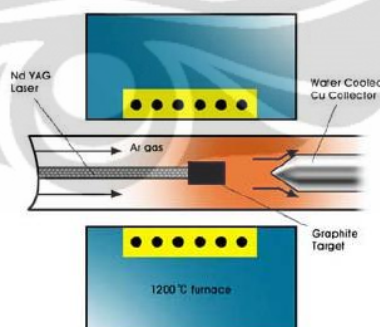
Gambar 2.7 Skema *arc-discharge*
(Daenen, 2003)

Metode ini mampu menghasilkan nanokarbon dengan kualitas baik, namun sulit digunakan dalam scale up untuk skala industri karena faktor ekonomis. Diperlukan proses pemurnian yang kompleks, karena struktur grafit dan nanokarbon yang terbentuk memiliki kesamaan sifat sehingga seringkali produk nanokarbon yang dihasilkan ikut terbuang dengan grafit. Selain itu, elektroda memerlukan penggantian secara terus menerus sehingga proses tidak dapat dioperasikan secara kontinyu (See dan Harris, 2007).

b. Laser Ablation

Metode ini menggunakan sumber laser untuk menghasilkan temperatur tinggi pada karbon sebagai target. Karbon yang menguap kemudian mendingin dengan cepat di dalam aliran gas pembawa, misalnya helium, sehingga membentuk nanokarbon. Metode ini menghasilkan kualitas nanokarbon yang sangat baik. Sama halnya seperti pada *arc-discharge*, metode ini sulit di *scale up*, biaya produksinya mahal dan memerlukan proses pemurnian yang kompleks.

Metode ini diperkenalkan oleh Smalley dan rekan-rekannya pada tahun 1996 dan dihasilkan nanotube karbon jenis SWNT berdiameter 5-20 nm dalam bentuk *bundle*, dengan menggunakan metode penguapan batang grafit dengan Ni dan Co pada suhu 1200°C (Gambar 2.7).



Gambar 2. 8 Skema peralatan *Laser Ablation*
(Daenen, 2003)

c. ***Chemical Vapor Deposition (CVD)***

CVD pada dasarnya merupakan reaksi dehidrogenasi termal melalui katalis metal transisi seperti besi, nikel atau kobalt, yang digunakan untuk mengurangi suhu yang dipersyaratkan, sehingga terjadi *crack* atau perengkahan hidrokarbon sebagai umpan menjadi karbon dan hidrogen. Bahan baku hidrokarbon yang digunakan bisa berupa metana, etilen, dsb. Penggunaan CVD diantaranya pada *fixed bed*, *fluidized bed*, *aerosol*, *floating catalysts* dan metode kombinasi seperti *plasma enhanced (PECVD)* dan *laser-assisted techniques*. (See and Harris, 2007)

Sintesis nanokarbon dengan metode CVD dan berbahan baku metana dikenal dengan dekomposisi katalitik metana. Reaksi dekomposisi metana merupakan proses sintesis nanokarbon yang paling ekonomis diantara metode lainnya. Pada metode ini, material yang digunakan sebagai bahan baku harganya tidak terlalu tinggi, proses pemurnian produknya cukup sederhana, yield produk cukup tinggi dan mudah dikontrol.

2.5 Katalis

Katalis dapat didefinisikan sebagai substansi yang dapat meningkatkan laju reaksi untuk mencapai kesetimbangan tanpa ikut secara permanen dalam reaksi tersebut. Fungsi katalis diantaranya untuk mempercepat reaksi menuju kesetimbangan atau fungsi aktivitas dan meningkatkan hasil reaksi yang dikehendaki atau fungsi selektivitas. Tiga parameter utama dari kinerja katalis (Nasikin dan Susanto, 2010):

1. Aktivitas yaitu peran katalis untuk meningkatkan kecepatan reaksi.
2. Selektivitas yaitu peran katalis untuk meningkatkan produk yang diinginkan.
3. Deaktivasi yaitu penurunan aktivitas dari katalis yang dihubungkan dengan masa hidup katalis (*life-time*).

Permasalahan utama dalam proses dekomposisi hidrokarbon, termasuk metana, adalah terjadinya deaktivasi katalis. Secara umum terdapat tiga kategori penyebab terjadinya deaktivasi katalis, yaitu (Fogler, 1999):

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

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

b. Deaktivasi karena *coking* atau *fouling*

Terjadi karena terdapatnya *coke* atau material yang menutupi permukaan pori-pori katalis. *Coking* dapat diatasi dengan menaikkan tekanan. *Coking* akan mempengaruhi kecepatan deaktivasi yang disebabkan adanya proses difusi karbon ke dalam pori-pori katalis Ni dengan ditandai terbentuknya deposit karbon (Ermakova, 1999).

c. Deaktivasi karena *poisoning*

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

2.5.1 Pembagian Katalis

Reaksi katalisis berdasarkan hubungan antara fasa reaktan dan fasa katalis terbagi menjadi tiga bagian yakni :

1. Katalisis Homogen merupakan reaksi kimia terjadi pada fasa yang sama antara reaktan dan katalis yang pada umumnya berada pada fasa cair. Katalisis terjadi melalui pembentukan kompleks dan pembentukan kembali antara molekul-molekul dan ligan-ligan katalis. Secara operasional reaksi katalisis homogen lebih mudah dan tidak membutuhkan energi namun jarang digunakan di dunia industri karena diperlukan peralatan tambahan untuk memurnikan produk.

2. Katalisis Heterogen, katalis memiliki fasa yang berbeda dengan reaktan (bahan yang bereaksi). Reaktan akan teradsorpsi pada permukaan aktif katalis, selanjutnya akan terjadi interaksi baik berupa reaksi sebenarnya pada permukaan katalis atau pelemahan ikatan dari molekul yang teradsorpsi. Setelah reaksi terjadi, molekul hasil reaksi (produk) dilepas dari permukaan katalis. Katalis heterogen dilihat dari karakteristiknya (tabel 2.1) memiliki keunggulan sehingga sistem ini paling luas digunakan dalam dunia industri.
3. Katalisis Enzim, enzim digunakan sebagai pemicu untuk reaksi biokimia. Katalis ini selektif dan efisien untuk reaksi tertentu saja.

Tabel 2. 1 Perbandingan Karakteristik Katalis Heterogen dengan Homogen

Karakteristik	Katalisis Heterogen	Katalisis Homogen
Pusat Reaktif	Hanya pada permukaan	Semua atom logam
Bentuk	Padat, seringkali logam atau oksida logam	Kompleks logam
Jumlah	Banyak	Sedikit
Sensitivitas terhadap racun	Tinggi	Rendah
Masalah difusi	Terjadi	Tidak terjadi
Spesifik/selektivitas	Variabel (rendah)	Tinggi
Stokiometri	Lebih sulit diketahui	Dapat diketahui
Kondisi Reaksi	Tinggi	Ringan
Pemisahan Katalis	Mudah	Sulit
Kejelasan mekanisme	Sulit	Mungkin
Daur Ulang (<i>recycling</i>)	Mudah	Sukar dan mahal
Rata-rata waktu pakai	Variabel	Lama

2.5.1 Katalis pada Reaksi Dekomposisi Metana

Pemilihan katalis yang tepat sangat berperan penting dalam sintesis CNT karena bisa mempengaruhi laju dekomposisi karbon, *yield*, selektivitas dan kualitas produk. Terdapat tiga komponen utama pada katalis yaitu :

1. Inti Aktif Katalis

Inti aktif katalis merupakan unsur utama penentu aktivitas katalis dalam reaksi. Pada reaksi dekomposisi metana yang paling banyak dipakai adalah logam Ni, Co, dan Fe. Nikel merupakan katalis yang paling aktif untuk reaksi dekomposisi katalitik metana namun mudah terdeaktivasi dan sintering sehingga diameter partikel Ni membesar (He,2007). Pada penelitian berbasis nikel biasanya dilakukan penambahan promotor yang dapat mengatasi deaktivasi dan sintering (Chen,2001; Chen,2004; Purwanto,2009). Selain itu, Ni memiliki kapasitas ukuran pori yang relatif tinggi untuk pertumbuhan karbon, *Yield* karbon yang dihasilkan relatif tinggi dibanding logam lainnya (Co dan Fe), memiliki *toxicity* relatif rendah dan harganya relatif murah (Ermakova,2000)

2. Penyangga (support)

Penyangga berfungsi untuk menjaga kekuatan mekanis dari katalis yang lemah dan menyediakan luas permukaan yang besar bagi inti aktif. Selain itu, penyangga juga berkontribusi dalam aktivitas katalitik, tergantung dari reaksi yang berlangsung dan kondisi reaksinya. Namun penggunaan penyangga hanya mengijinkan *loading* inti aktif yang sedikit, sehingga menghasilkan lebih sedikit *yield* karbon daripada *yield* karbon dari katalis tanpa penyangga. Pada umumnya penyangga alumina menghasilkan produk CNT sementara silika cenderung menghasilkan CNF (Ermakova,1999). Contoh dari penyangga yaitu Al_2O_3 , Silika (SiO_2), Magnesia (MgO), zeolit dan silika mesopori(Nasikin dan Susanto,2010).

3. Promotor

Promotor merupakan zat yang ditambahkan dalam preparasi katalis dalam jumlah kecil, memberikan aktivitas, selektivitas dan stabilitas yang lebih baik dari katalis (Nasikin dan Susanto,2010).

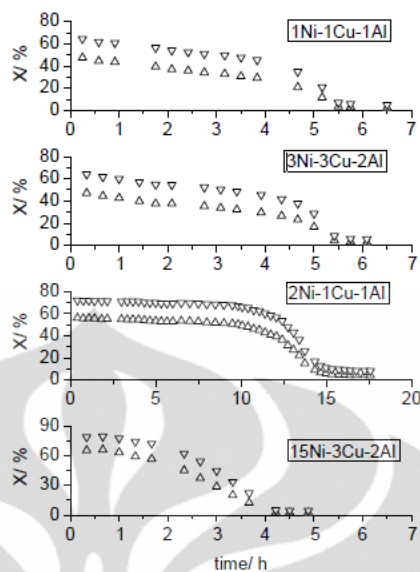
a. Promotor struktural

Promotor struktural mengubah komposisi kimia dari katalis sehingga mempengaruhi sifat kimia dari katalis tersebut. Pada penelitian, promotor struktural yang biasanya digunakan adalah Cu. Hal ini dikarenakan sifat Cu yang memiliki afinitas yang tinggi terhadap struktur grafit yang dapat menghambat terbentuknya lapisan grafit pada permukaan inti aktif sehingga deaktivasi katalis yang disebabkan pembungkusan katalis akibat akumulasi karbon yang terlalu cepat dapat dihindari (Chen, 2004). Selain itu, logam Cu dapat menurunkan titik leleh katalis karena karbon nanotubes dapat terbentuk pada kondisi katalis dalam keadaan liquid (Chen, 2001)

b. Promotor tekstural

Promotor tekstural bersifat sebagai penstabil (*stabilizer*) yang merupakan bahan *inert* yang dapat mencegah terjadinya *sintering* pada partikel katalis yang berbentuk mikrokristal. Pada umumnya, promotor tekstural memiliki ukuran yang lebih kecil, bersifat inert dan titik lelehnya lebih tinggi daripada inti aktif. Promotor tekstural terdapat pada senyawa oksida logam *Hard-to-Reduced Oxide* (HRO), seperti Al_2O_3 , SiO_2 , ZrO_2 , Cr_2O_3 , CeO_2 , MgO , dan TiO_2 . Promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) yang menjaga diameter partikel Ni tetap kecil dan mencegah *sintering*.

Beberapa penelitian menunjukkan bahwa katalis Ni-Cu-Al dengan komposisi 2:1:1 menghasilkan kualitas maupun kuantitas nanokarbon yang baik (Astika, 2007; Chen, 2001; Chen, 2004). Reaktivitas katalis pun meningkat secara signifikan dibandingkan hanya menggunakan katalis Nikel murni (Naghash, 2004). Terlihat pada kurva dibawah ini (Gambar 2.9) bahwa katalis dengan komposisi Ni-Cu-Al 2:1:1 memiliki stabilitas lebih lama.



Gambar 2. 9 kurva konversi metana pada katalis Ni-Cu-Al (Chen,2004)

2.6 Teknik Preparasi Katalis dengan Metode Kopresipitasi

Teknik preparasi katalis berpengaruh pada sifat partikel katalis yang dihasilkan, seperti luas permukaan kontak, diameter partikel katalis, dan lain sebagainya. Teknik preparasi yang paling sering digunakan pada dekomposisi katalitik metana adalah impregnasi, presipitasi atau ko-presipitasi dan sol-gel (See,2007). Pada penelitian ini digunakan metode ko-presipitasi karena memungkinkan *loading* logam dalam jumlah yang lebih besar daripada metode impregnasi. Tahapan-tahapan dalam metode kopresipitasi mempengaruhi produk yang diperoleh :

1. Presipitasi

Larutan logam nitrat dalam bentuk garamnya membentuk senyawa hidrotalcite ditambahkan *precipitating agent*. Presipitan yang sering digunakan adalah hidroksida dan karbonat karena kelarutannya rendah, mudah terdekomposisi, dan juga tingkat racunnya rendah. Presipitasi adalah proses untuk memperoleh oksida logam yang terendap (terdeposit). Larutan ini kemudian diaduk sambil ditetesi larutan pengendap, yang biasanya adalah larutan basa atau larutan alkali sampai dicapai kondisi keasaman larutan yang optimal. Pada penelitian ini dilakukan penambahan Na_2CO_3 hingga mencapai pH 7.

2. Pencucian/*washing*

Proses ini bertujuan untuk menghilangkan pelarut dalam pori-pori dan ruang antara partikel-partikel (*interparticular space*) menggunakan larutan pencuci (campuran aseton dengan air murni) agar ion-ion atau padatan-padatan yang tidak bermanfaat dan tidak diharapkan tereliminasi. Selain itu, pencucian juga diharapkan dapat melepaskan ion-ion yang teradsorp pada permukaan padatan atau tercampur dalam padatan setelah proses presipitasi.

3. Pengeringan/*Drying*

Pengeringan adalah proses menghilangkan air atau pelarut dan pori-pori padatan yang dilakukan dengan cara memasukkan padatan yang telah dicuci ke dalam oven pada suhu 120⁰C.

4. Kalsinasi

Kalsinasi adalah proses pemanasan padatan katalis pada temperatur yang tinggi (250 – 800⁰C). Proses ini bertujuan menghilangkan senyawa volatil, kation dan anion yang tidak stabil yang ditambahkan sebelumnya, dari produk akhir katalis. Serta untuk meningkatkan kekuatan produk akhir katalis dengan menyebabkan terjadinya sintering. Namun, sintering yang berlebihan dapat menurunkan aktivitas katalis. Pada penelitian sebelumnya (Eky, 2005; Chai,2007) kenaikan suhu kalsinasi menyebabkan kenaikan diameter partikel Ni atau Fe, disertai kenaikan *yield* produk karbon. Ukuran diameter produk nanokarbon hanya sedikit lebih besar dari ukuran diameter katalisnya . Sesuai penelitian sebelumnya, suhu kalsinasi sebaiknya berada diatas suhu reaksi. Pada penelitian ini, suhu kalsinasi berada pada suhu 800⁰C.

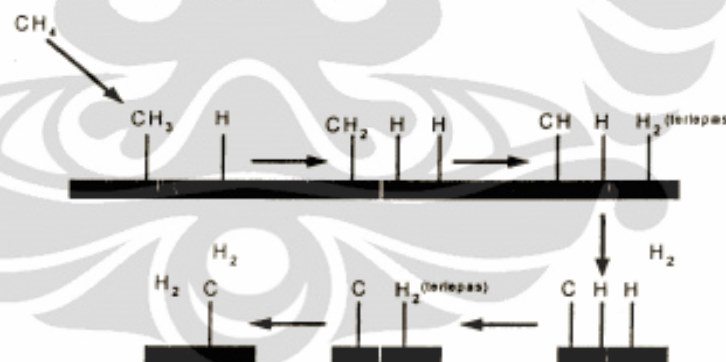
5. Reduksi

Reduksi dilakukan dengan melewati gas hidrogen atau hidrogen terlarut dalam nitrogen pada katalis pada suhu tertentu sebelum katalis tersebut dilakukan uji kinerjanya. Reduksi biasanya dilakukan secara *in situ* pada reaktor. Perlakuan reduksi ini bertujuan untuk mendapatkan partikel inti aktif katalis dalam bentuk atom logam (Ni atau Fe) pada

produk akhir katalis, bukannya molekul logam oksida (misalnya: NiO, Fe₂O₃). Hal ini dikarenakan pada reaksi dekomposisi metana, bagian yang berperan untuk sebagai tempat tumbuhnya karbon adalah partikel inti aktifnya. Sebenarnya, untuk reaksi dekomposisi metana tidak diperlukan perlakuan reduksi karena partikel katalis dalam reaktor akan tereduksi dengan sendirinya pada awal-awal reaksi. Hal ini disebabkan adanya produk hidrogen yang terbentuk. Meskipun demikian, reduksi perlu dilakukan untuk menjaga kualitas hidrogen yang dihasilkan.

2.7 Mekanisme Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Pada reaksi dekomposisi metana, sebuah molekul metana direngkahkan (*cracking*) menjadi sebuah molekul karbon dan dua buah molekul hidrogen. Gambar 2.10 menunjukkan mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana. Atom hidrogen terputus satu persatu membentuk ion karbonium dan pada akhirnya didapatkan sebuah molekul atom karbon dan dua molekul hidrogen pada akhir reaksi.

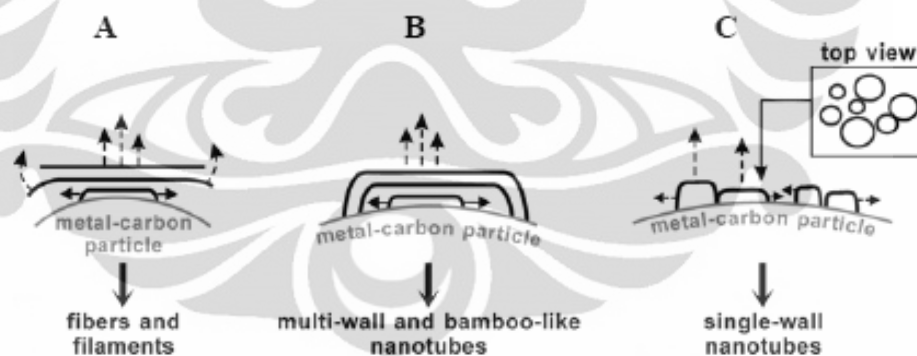


Gambar 2. 10 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana
(Snoeck,1997)

Teori mekanisme pertumbuhan nanokarbon 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. Begitupun menurut 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 nanokarbon yang diperoleh adalah *bamboo-shaped carbon*. Nanotube karbon baru diperoleh bila laju pembentukan lapisan karbon dan laju pergerakan logam sama.

Faktor lain yang menentukan jenis karbon yang dihasilkan suatu proses dekomposisi metana adalah proses nukleasi karbon pada logam (Kuznetsov, 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 suhu eutektik. Karbon-karbon tersebut selanjutnya bergabung membentuk ikatan heksagonal yang kemudian bertransformasi menjadi lembaran grafit.



Gambar 2. 11 Mekanisme pembentukan nukleus pada pertumbuhan (a) karbon nanofilamen; (b) MWNT; dan (c) SWNT (Kuznetsov, 2001)

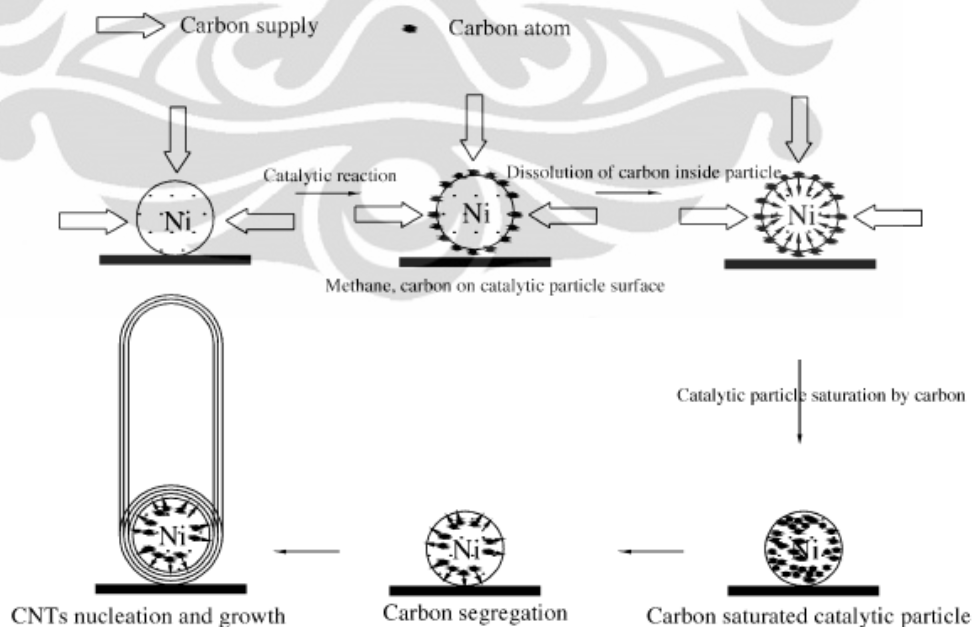
Gambar 2.11(a) menunjukkan terbentuknya nanofilamen. Kondisi dimana permukaan partikel logam kurang jenuh karbon, nukleus yang dihasilkan berukuran relatif besar dan tumbuh secara berkesinambungan maka akan menghasilkan pembentukan lembaran grafit yang menutupi sebagian besar permukaan partikel logam. Faktor dari permukaan logam yang kurang jenuh akan membuat karbon nukleus berikutnya tumbuh di bawah nukleus yang pertama

tanpa berikatan dengan partikel logam di permukaan. Hal ini berlangsung terus-menerus sehingga didapatkan tumpukan lembaran grafit menuju sudut tertentu atau sejajar arah aksial dan fiber.

Pada Gambar 2.11(b) menunjukkan proses pembentukan *Multi-Walled Nanotube* (MWNT) pada permukaan partikel logam yang lebih jenuh karbon. Selain itu, ujung dari nukelus berikutnya akan selalu berikatan dengan permukaan partikel logam. Pada mekanisme pertumbuhan MWNT, sebelum terbentuk nukelus yang baru, terjadi difusi atom karbon membentuk nanotube, begitu seterusnya sehingga didapatkan dinding nanotube yang berlapis-lapis.

Sedangkan pada Gambar 2.11(c) menunjukkan proses pertumbuhan SWNT, beberapa nukelus mengendap pada permukaan partikel logam yang sama. Hal ini dapat terjadi jika karbon permukaan partikel logam sangat jenuh karbon.

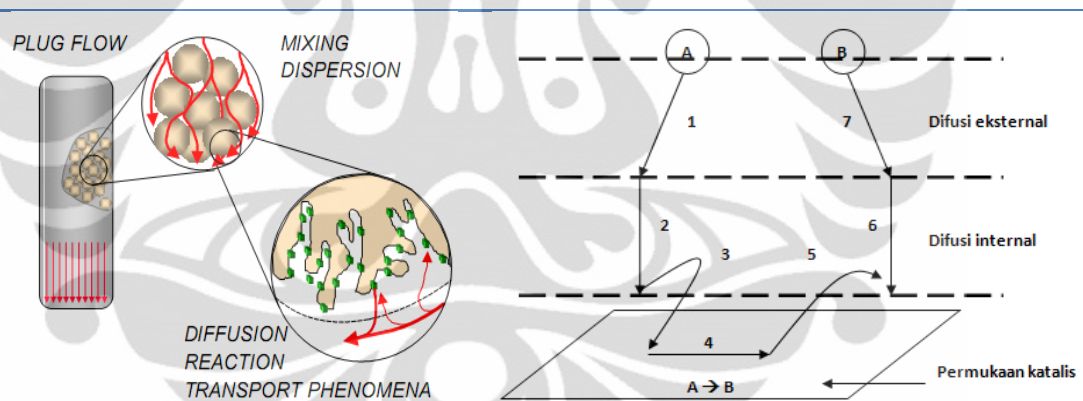
Menurut He,2007, terjadi penjumlahan karbon pada partikel nikel yang digunakan sebagai katalis setelah terjadi reaksi katalitik. Partikel nikel akan jenuh dengan karbon dan pemisahan karbon terjadi secara berkesinambungan sehingga penumbuhan Karbon nanotube terjadi. Mekanisme pertumbuhan karbon nanotube dapat dilihat pada Gambar 2.12 dibawah ini.



Gambar 2. 12 mekanisme pertumbuhan karbon nanotubes (He,2007)

Peristiwa-peristiwa yang terjadi di dalam reaktor katalitik antara dua fasa gas dan solid. Pada reaksi katalitik heterogen terdapat beberapa tahap terjadinya reaksi seperti pada Gambar 2.13 dibawah ini (Fogler, 1999), yaitu:

1. Perpindahan massa (difusi eksternal) reaktan dari fluida bulk ke permukaan eksternal katalis.
2. Difusi reaktan dari mulut pori melewati pori katalis ke permukaan katalis internal (difusi internal).
3. Adsorpsi reaktan di atas permukaan katalis.
4. Reaksi permukaan dari katalis.
5. Desorpsi produk dari permukaan katalis.
6. Difusi produk dari bagian dalam katalis ke mulut pori pada permukaan eksternal.
7. Perpindahan massa produk dari permukaan katalis eksternal ke fluida bulk.



Gambar 2. 13 (a) Peristiwa di dalam reaktor katalitik dan (b) tahap reaksi katalitik

2.8 Pengaruh Kondisi Operasi terhadap Pertumbuhan Nano Karbon

Beberapa parameter kondisi operasi :

2.8.1 Suhu Reaksi

Suhu mempengaruhi hasil reaksi baik secara kualitas maupun kuantitas. Laju reaksi kimia termasuk dekomposisi metana, akan bertambah dengan naiknya temperatur sampai kondisi kesetimbangan tercapai. Peningkatan temperatur ini akan berpengaruh pada stabilitas katalis.

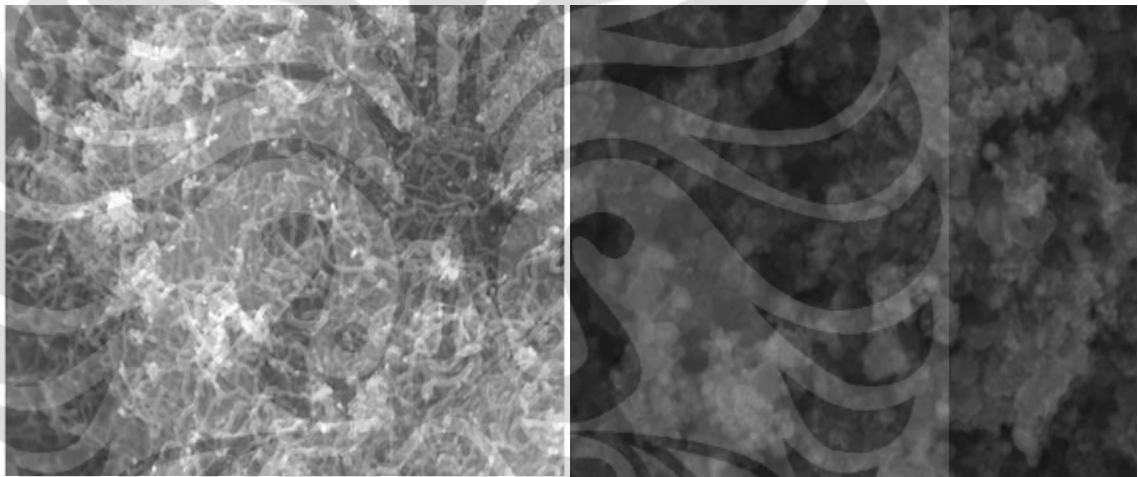
Pada teknik CVD berbasis nanokarbon dengan bentuk MWNTs umumnya diamati pada suhu reaksi antara 500 dan 800 ° C, sedangkan SWNTs cenderung diamati pada suhu reaksi lebih tinggi (> 800 ° C). Lee dan Park, 2002, mengamati pertumbuhan CNT antara 800 dan 1100 ° C. Terlihat peningkatan diameter rata-rata CNT 20-150 nm dan laju pertumbuhan 1,6-28 im / menit dengan meningkatkan suhu dalam reaktor fixed-bed.

Begitupun Kumar dan Ando, 2005, meneliti peningkatan diameter nanokarbon yaitu CNT dengan peningkatan suhu reaksi (dari 8 nm pada 700 ° C untuk 26 nm pada suhu 900 ° C). Hasil ini menunjukkan peningkatan diameter nanokarbon dengan suhu sintesis meningkat. Namun sebaliknya, Nerushev, 2002, tidak melihat hubungan apapun antara diameter nanokarbon dan suhu reaksi antara 550 dan 1100 ° C dengan menggunakan CVD reaktor fixed-bed pada ukuran yang tidak ditentukan.

Penelitian yang dilakukan oleh Sergei (2004), beliau melihat pengaruh suhu reaksi terhadap laju spesifik pembentukan karbon, diketahui bahwa laju reaksi awal semakin tinggi namun juga semakin cepat turun seiring meningkatnya temperatur. Semakin tinggi suhu reaksi, maka semakin cepat terjadinya deaktivasi. Deaktivasi tersebut kemungkinan besar terjadi karena sintering. Sintering bisa diabaikan bila temperatur operasi berada di bawah suhu Huttig atau Raman, yaitu 0,3 atau 0,5 titik lebur logam katalis yang dipakai. Pada percobaan ini, digunakan inti aktif nikel yang memiliki titik lebur 1452⁰C. Seharusnya suhu operasi berada di bawah 435⁰C atau 726⁰C agar eksperimen aman dari sintering. Pada temperatur 700⁰C, konversi cukup stabil bahkan sampai jam ke-14 karena masih berada di bawah temperatur Raman. Saat suhu reaksi 750⁰C dan 800⁰C,

deaktivasi terlihat semakin cepat seiring meningkatnya suhu reaksi. Hal ini karena temperaturnya sudah melebihi suhu yang aman dari sintering.

Purwanto (2009), menggunakan katalis Ni/Cu/Al dan umpan CH_4 dalam pembentukan nanotube karbon. Penelitian menunjukkan bahwa *yield* paling tinggi diperoleh pada suhu 700°C , dibandingkan dengan suhu 750°C dan 800°C . Berdasarkan penelitian terdahulu dan hasil SEM dibawah ini, terlihat bahwa suhu reaksi sangat berpengaruh sekali terhadap pertumbuhan Nanokarbon baik secara kualitas maupun kuantitas. Terlihat perbedaan morfologi nanokarbon yang dihasilkan. Untuk menghasilkan produk yang baik diperlukan proses yang optimal, salah satunya suhu reaksi yang digunakan harus dalam rentang optimal.



Gambar 2. 14 SEM katalis Ni:Cu:Al-78:6:16 dengan metode kopresipitasi selama 8 jam pada a)Treaksi: 700°C ; b)Treaksi: 800°C (Moliner,2006)

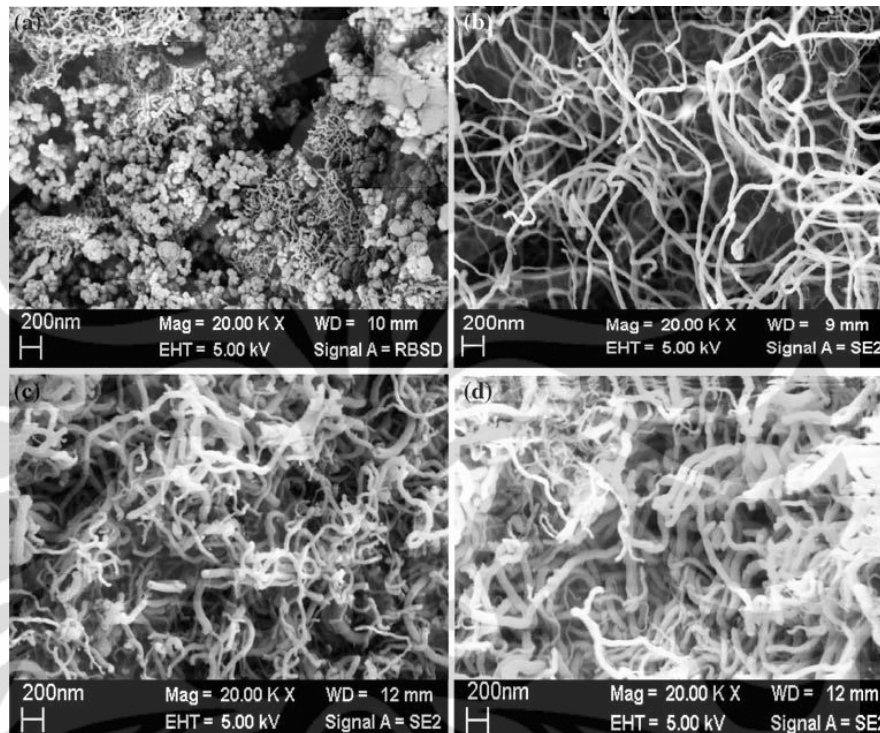
Tabel 2. 2 Produk yang diperoleh pada suhu reaksi dan katalis tertentu

Katalis	Treaksi (⁰ C)	Bentuk	Yield	Refference
15Ni-3Cu-2Al	700	CNT	4.8gC/gCat	Chen,2004
2Ni-1Cu-1Al	740	Hollow Fiber	152gC/gCat	Chen,2004
75Ni-8Cu-17Al	700	mix- bamboo&tubular	230mgC/mgNi	Chen,2001
75Ni-8Cu-17Al	720	nanotube large internal diameter	42mgC/mgNi	Chen,2001
75Ni-8Cu-17Al	720	Nanotube small internal diameter	37mgC/mgNi	Chen,2001
75Ni-15Cu-Al	730	Bamboo-shaped	16.7mgC/mgNi	Chen,2001
75Ni-15Cu-Al	770	Bamboo-shaped	11mgC/mgNi	Chen,2001
2Ni-1Cu-1Al	750	MWNT	1.78gC/gCat	Zhao,2006
Ni-Mo-MgO	1000	MWNT	80gC/gCat	Li,2005
NiO/Al ₂ O ₃	550	Karbon Fiber		Chai,2007
NiO/Al ₂ O ₃	700	MWNT		Chai,2007
2,6Fe-2,6Co	700	MWNT	3,59gC/gCat	Kathyayini, 2004

2.8.2 Waktu Reaksi

Semakin besar berat katalis per laju alir umpan (W/F) maka konversi juga akan semakin besar karena waktu kontak antara reaktan dengan katalis semakin lama sehingga kesempatan reaktan untuk saling bertemu dan bereaksi semakin besar. Akan tetapi, suatu saat konversi akan konstan meskipun W/F semakin diperbesar. Kejadian ini dimungkinkan karena reaktan yang tersisa sudah tidak mampu lagi untuk bereaksi lebih lanjut, karena telah mencapai kesetimbangan atau stabilitas katalis berkurang. (Purwanto, 2009). Rahman (2006) memperlihatkan bahwa stabilitas katalis dapat bertahan hingga 14 jam. Terjadi penambahan nanokarbon secara signifikan.

Namun pengaruh waktu reaksi sangat berpengaruh pula terhadap morfologi karbon nanotube. Wang, 2007, mengamati pengaruh waktu reaksi dengan metode CVD. Berdasarkan morfologinya terlihat bahwa waktu reaksi 20 menit memberikan hasil karbon nanotube yang terbaik, dibandingkan dengan reaksi yang lebih lama.



Gambar 2. 15 SEM katalis Ni/Al₂O₃ (a) 14 jam reaksi pada 650^oC, (b) 13 jam reaksi pada 600^oC, (c) 8 jam reaksi pada 550^oC dan (d) 16 jam reaksi pada 500^oC (Rahman,2006)

Dapat diketahui bahwa waktu reaksi merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi kondisi optimal untuk memperoleh produk nano karbon dengan kualitas yang baik.

2.8.3 Tekanan Operasi

Chen (2004), mengamati bahwa tekanan rendah (200 kPa dibandingkan dengan 600 kPa) meningkatkan penyebaran distribusi diameter nanokarbon serta menurunkan selektivitas nanokarbon. Tekanan lebih rendah tidak dinyatakan mempengaruhi diameter nanokarbon. Li, 2001, menunjukkan bahwa tekanan yang tidak mempengaruhi diameter nanokarbon secara signifikan tetapi mempengaruhi

hasil dan kualitas hasil sintesis. Pada penelitian ini tekanan operasi yang digunakan adalah tekanan rendah atau tekanan atmosferik. Hal ini karena reaksi dekomposisi metana adalah reaksi endotermis dimana penambahan tekanan akan menggeser kesetimbangan reaksi ke arah kiri (menambah reaktan).

2.8.4 Laju Alir Umpan

Variasi laju alir umpan diperlukan karena pada penelitian sebelumnya (anindya,2010) terlihat bahwa kenaikan laju alir umpan akan meningkatkan konversi CH₄. Fenomena ini diakibatkan adanya peningkatan difusi eksternal (difusi ruah), sehingga tumbukan antar molekul reaktan menjadi bertambah. Namun, pada suatu nilai laju alir tertentu, konversi akan cenderung konstan walaupun laju alir terus ditingkatkan karena laju difusi eksternal telah mencapai maksimum. Pada penelitian ini dilakukan variasi laju alir sebesar 40 mL/mnt, 80 mL/mnt dan 120 mL/menit.

2.9 Metode Karakterisasi

Pada penelitian ini, dilakukan karakterisasi untuk mengetahui morfologi nanokarbon dan luas permukaan nanokarbon sesuai dengan kondisi operasi yang divariasikan.

2.9.1 EM (Electron Microscopy)

Electron Microscopy (EM) merupakan salah satu teknik yang digunakan untuk melihat morfologi suatu material. Informasi mengenai morfologi mencakup bentuk dan ukuran dari katalis dan produk yang dihasilkan sangat diperlukan terutama untuk melihat karakteristik produk yang dihasilkan yaitu nanokarbon. Dua teknik utama EM dibedakan menjadi *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan *Transmission Electron Microscopy* (TEM). Pada prinsipnya kedua teknik ini sama yaitu 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. SEM memiliki resolusi mikroskopi elektron 10 nm. Sedangkan analisis menggunakan TEM memiliki kelebihan karena resolusinya lebih tinggi.

Pada perbesaran kecil, gambar yang dihasilkan oleh TEM akan kontras karena absorpsi elektron pada material akibat dari ketebalan dan komposisi material. Pada perbesaran tinggi, gambar yang dihasilkan akan menampilkan data yang lebih jelas pada analisa struktur kristal, dan lainnya. TEM digunakan yaitu untuk membentuk gambar yang menampilkan bidang gelap (dark field) atau Bidang terang (bright field) dan gambar kisi – kisi dalam fasa pada mikroskop elektron transmisi standar. Sebuah gambar BF atau DF dibentuk ketika berkas searah (satu Difraksi) yang digunakan untuk pembentukan gambar sedangkan bagian – bagian objektif mencegah difraksi yang lain untuk masuk ke sistem perekaman.

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.

2.9.2 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. 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 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.

2.10 State Of The Art Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Karakteristik Nanokarbon

Tabel 2. 3 State Of The Art pengaruh kondisi operasi terhadap karakteristik nanokarbon

No	Peneliti (tahun)	Judul Jurnal	Reaksi	Reaktor/ Katalis	Kondisi Operasi	Hasil
1	Zhi-jun Sui, dkk (2009)	Catalytic Vapor Decomposition of Methane over Nickle Catalyst: Growth Rate and the Corresponding Microstructures of Carbon Nanofibers	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ /H ₂ & produk : H ₂ dan CNF)	Ni20%/Al ₂ O ₃ dengan metode presipitasi-deposisi	Feed:P _{H2} = 0-0,29 atm P _{CH4} = 0,28-0,71 atm T = 773-973 K	<ul style="list-style-type: none"> Yield Karbon tertinggi sebesar 11,69g/gcat diperoleh pada kondisi : T = 873K P_{H2} = 0,29 atm P_{CH4} = 0,57 atm
2	J.I. Villacampa (20003)	Catalytic decomposition of methane over Ni-Al ₂ O ₃ coprecipitated catalysts Reaction and regeneration studies	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ /H ₂ & produk : H ₂ dan Karbon Filamen)	Ni30%/Al ₂ O ₃ dengan metode kopresipitasi	massa sampel = 100mg T = 550-650 ⁰ C Laju total = 675 NmL/min	<ul style="list-style-type: none"> Katalis aktif untuk cracking gas methane pada suhu diatas 550⁰C
3	Shuanglin Zhan, dkk. (2007)	Effect of process conditions on the synthesis of carbon nanotubes by catalytic decomposition of methane	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ /H ₂ & produk : CNT)	Fixed Bed Reactor / Ni-Mo/Mgo	Treaksi = 600-900 ⁰ C Waktu reaksi = 0-240 menit Laju CH ₄ /H ₂ = minimum (40/20 mL)	<ul style="list-style-type: none"> Kondisi Optimal Treaksi = 900⁰C Waktu reaksi = 60 menit Laju CH₄/H₂ = 100:20mL/menit Kemurnian produk diperoleh diatas 95%

Tabel 2.3 State Of The Art Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Karakteristik Nanokarbon (Lanjutan)

No	Peneliti (tahun)	Judul Jurnal	Reaksi	Reaktor/ Katalis	Kondisi Operasi	Hasil
4	Praswasti PDK Wulan,dkk (2009)	The Effect Of Reaction Time To The Quality Of Hydrogen And Carbon Nanotubes Produced Through Catalytic Decomposition Of Methane	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ & produk : H ₂ dan CNT)	Reaktor Gauze / Ni-Cu-Al dengan metode sol-gel	Treaksi = 700 ⁰ C Laju Alir CH ₄ = 315 mL/menit Waktu reaksi = variasi (20,30,40,50 & 60 menit)	<ul style="list-style-type: none"> • CNT dengan kualitas lebih baik diperoleh pada t = 20 menit. • Semakin bertambah waktu reaksi maka kualitas katalis menurun. •
5	Widodo Wahyu Purwanto,dkk (2009)	Pengaruh <i>Space Time</i> , Temperatur, dan Rasio Umpan terhadap Kinerja Reaktor <i>Gauze</i> untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ & produk : H ₂ dan CNT)	Reaktor Gauze/Katalis Ni-Cu-Al dengan metode sol-gel	Treaksi = 700 ⁰ C-800 ⁰ C Space time = range 0.006-0.0006 gr min/mL Tekanan Atmosfer	<ul style="list-style-type: none"> • T optimal = 700⁰C • Space Time = 0.006 gr min/mL • yield karbon = 90.66%
6	Jiuling Chen,dkk (2004)	Production of CO _x -free hydrogen and nanocarbon by direct decomposition of undiluted methane on Ni-Cu-alumina catalysts	Dekomposisi Katalitik Metana (produk : H ₂ dan CNT)	Tubular reaktor/ Ni-Cu-Al	Variasi komposisi katalis : 15Ni-3Cu-2Al, 2Ni-1Cu-1Al, 3Ni-3Cu-2Al and 1Ni-1Cu-1Al T = 773-1013 K	<ul style="list-style-type: none"> • 2Ni-1Cu-1Al paling stabil • T optimal pada 973 K

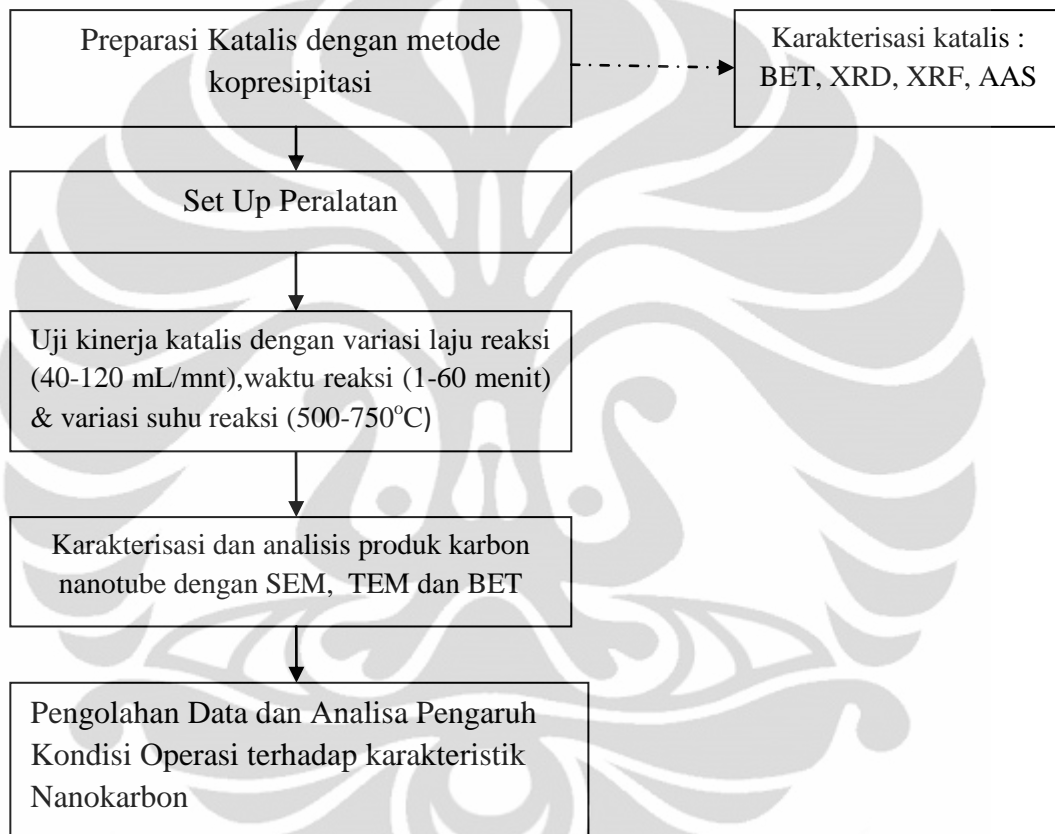
Tabel 2.3 State Of The Art Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Karakteristik Nanokarbon (Lanjutan)

No	Peneliti (tahun)	Judul Jurnal	Reaksi	Reaktor/ Katalis	Kondisi Operasi	Hasil
7	Widodo Wahyu Purwanto,dkk (2009)	Utilization Of Very Small Field Of Natural Gas By Methane Catalytic Decomposition. Effect Of Nickel Catalyst Diameter And Acidity On Nanocarbon And Hydrogen Quality And Methane Activation	Dekomposisi Katalitik Metana (Umpan : CH ₄ produk : H ₂ dan Nanokarbon)	Fixed Bed Reaktor/ Ni-Cu-Al	P atmosfer T = 500-700°C Laju Metana = 35 mL/min	<ul style="list-style-type: none"> • Hasil optimal (Ni-Cu/15Al) = 4.97 g C/g cat dengan life time of catalyst 1460 min. • T optimal = 700⁰C
8	Seung Yong Son,et al (2008)	High-Quality Multiwalled Carbon Nanotubes from Catalytic Decomposition of Carboneous Materials in Gas-Solid Fluidized Beds	Dekomposisi Katalitik Metana (produk : H ₂ dan MWCNT)	Fluidized Bed Reactor/Fe-Mo-MgO	T = 873-1223 K m = 2,5-20 g Variasi sumber karbon : CH ₄ , C ₂ H ₂ , C ₂ H ₄ , and C ₂ H ₆	<ul style="list-style-type: none"> • T= 1073 K untuk memperoleh kualitas yang baik • Produk CNTs bamboo structure diperoleh pada laju sumber karbon lebih besar daripada CNT

BAB 3 METODE PENELITIAN

3.1 Tahap Penelitian

Penelitian akan dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dan Bahan Alam, Departemen Teknik Kimia Departemen Teknik Kimia FTUI, Depok. Diagram alir penelitian adalah sebagai berikut:



Gambar 3. 1 Diagram Alir Penelitian

3.2 Peralatan dan Bahan Penelitian

Peralatan dan bahan penelitian yang digunakan sebagai berikut :

3.2.1 Peralatan yang dipergunakan dalam penelitian

1. Alat-alat untuk preparasi katalis terdiri dari:

Tabel 3. 1 Alat-alat yang digunakan untuk preparasi katalis

No.	Alat	No.	Alat
1	<i>Beaker glass</i> (2000 ml & 500 ml)	9	Termometer
2	Gelas ukur (100 ml dan 250 ml)	10	<i>Stop watch</i>
3	Pipet ukur (25 ml)	11	<i>Magnetic stirrer</i>
4	Spatula	12	Labu erlenmayer
5	Botol aquadest	13	<i>Buchner funnel</i>
6	<i>Hot plate</i>	14	Kaca arloji
7	Timbangan	15	pH meter digital
8	Cawan keramik		

2. Alat-alat untuk pengujian katalis terdiri dari:

- Mikro reaktor tabung *quartz* dengan *microbalance*
- Timbangan (*microbalance*) dan komputer dilengkapi dengan software AND
- *Gas Chromatography* (GC)
GC yang digunakan adalah Shimadzu Model GC-8A pada kolom karbon aktif dengan argon sebagai *carrier gas*
- *Cromato Integrator* dan kertas recorder
Cromato Integrator yang digunakan adalah Shimadzu Model R-G6A Chromatopac, dimana alat ini digunakan untuk mencetak hasil analisis dari kromatografi gas pada kertas recorder.
- *Tube furnace*

3.2.2 Bahan yang digunakan dalam penelitian

1. Bahan-bahan untuk preparasi katalis adalah sebagai berikut:
 - $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, *Nickel nitrate hexahydrate*, Merck
 - $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, *Copper nitrate hexahydrate*, Merck
 - $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, *Aluminium nitrate nonahydrate*, Merck
 - Na_2CO_3 , *Sodium carbonate*, Merck
 - *Deionized water*
 - Aseton
2. Bahan-bahan untuk uji kinetika dan stabilitas katalis terdiri dari:
 - Gas Hidrogen
 - Gas Metana
 - *Quartz wool*

3.3 Prosedur Penelitian

Prosedur penelitian meliputi preparasi katalis, karakterisasi katalis, set up rangkaian peralatan, kalibrasi alat dan uji kinerja katalis.

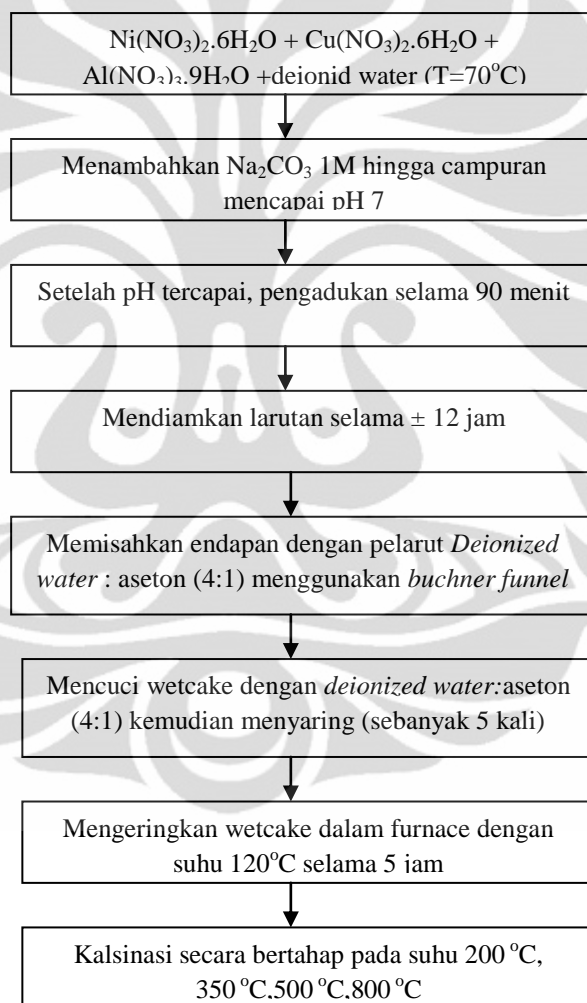
3.3.1 Preparasi Katalis

Preparasi katalis dilakukan dengan menggunakan metode kopresipitasi. Langkah-langkah yang digunakan untuk preparasi katalis pada penelitian ini sebagai berikut:

- a. Seluruh logam nitrat yang terdiri dari 145,355 gram $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$; 60,3925 gram $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan 78,25 gram $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ dicampur dalam 500 ml *deionized water* kemudian diaduk pada temperatur 70 °C sampai seluruh padatan tercampur seluruhnya.
- b. Pada temperatur normal, larutan Na_2CO_3 1M ditambahkan setetes demi setetes hingga mencapai pH campuran sama dengan 7. Setelah pH yang diinginkan tercapai, dilanjutkan dengan pengadukan selama 90 menit.
- c. Larutan didiamkan selama semalam (12 jam) untuk pengendapan
- d. Endapan yang terbentuk disaring menggunakan *buchner funnel* dengan pemvakuman

- e. *Wetcake* yang didapat setelah penyaringan vakum dicuci menggunakan campuran aseton dengan *deionized water* pada perbandingan 1:4. Langkah ini diulang sebanyak lima kali.
- f. *Wetcake* yang telah dicuci dikeringkan menggunakan *furnace* pada temperatur 120 °C selama 5 jam.
- g. Katalis yang diperoleh setelah pengeringan dikalsinasi secara bertahap pada suhu 200 °C, 350 °C, 500 °C dan 800 °C. Masing-masing selama 1 jam.

Diagram alir preparasi katalis untuk penelitian ini adalah sebagai berikut :



Gambar 3. 2 Diagram Alir Preparasi Katalis dengan Metode Kopresipitasi

3.3.2 Karakterisasi Katalis

Karakterisasi katalis setelah preparasi dan karakterisasi produk karbon nanotube dilakukan setelah uji aktivitas dan stabilitas. Karakterisasi dilakukan dengan menggunakan metode analisa sebagai berikut:

a. X-Ray Fluorescence (XRF)

Karakterisasi katalis dengan XRF dilakukan sebelum katalis direduksi. Tujuannya adalah untuk mengetahui komposisi unsur dari katalis yang telah dibuat. Pengujian karakterisasi XRF menggunakan mesin JEOL Element Analyzer JSX-3211 yang terdapat di Research Center of Material Science FMIPA UI, Salemba.



Gambar 3. 3 Alat X-Ray Fluorescence (XRF)

b. Atomic Absorption Spectroscopy (AAS)

Karakterisasi Atomic absorption Spectroscopy (AAS) dilakukan untuk penentuan kualitatif dan kuantitatif unsur-unsur kimia menggunakan penyerapan radiasi optik (cahaya) oleh atom-atom bebas dalam bentuk gas. Sampel yang diuji merupakan katalis sebelum di reduksi sehingga dapat diketahui komposisi katalis yang telah dibuat. Pengujian AAS dilakukan di Pusat Penelitian Kimia LIPI, Serpong.

c. X-Ray Diffraction (XRD)

Karakterisasi katalis dengan XRD dilakukan untuk mengetahui struktur kristal katalis dan ukuran partikel setiap fasa kristal tersebut. Analisa XRD dilakukan dengan menggunakan *diffractometer*. Struktur kristal katalis dapat diketahui dengan mencocokkan pola *peak* hasil analisa XRD dengan pola standar *peak* berbagai macam unsur. Sedangkan ukuran kristal pada setiap fasa dihitung dengan menggunakan persamaan *Scherer*, yaitu:

$$D_{CNT} = \frac{0.89\lambda}{\beta_d \cos \theta} \times \frac{180^\circ}{\pi} \quad (3.1)$$

Keterangan : D_{CNT} = ukuran kristal

λ = panjang gelombang radiasi sinar X (1.54056 Å)

β_d = lebar setengah tinggi *peak* tertinggi

Pengujian XRD pada katalis sebelum di reduksi. Pengujian XRD dilakukan di laboratorium PPSM-BATAN, Serpong.



Gambar 3. 4 Alat X-Ray Diffraction (XRD)

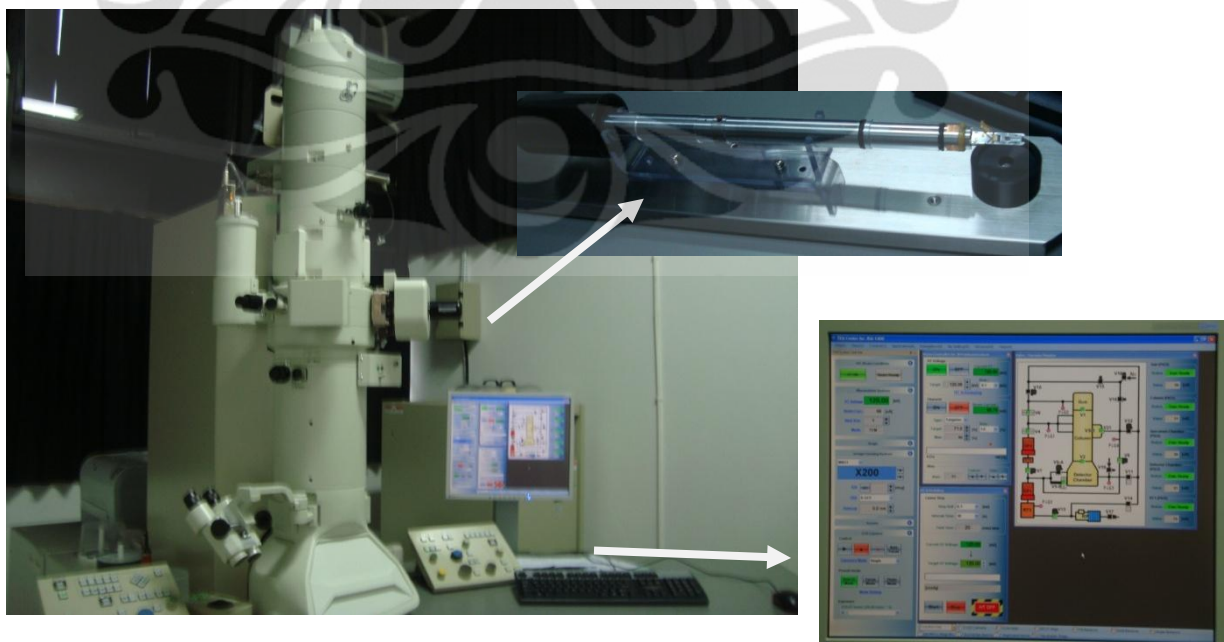
d. Scanning Electron Microscopy (SEM)

Karakterisasi menggunakan SEM-EDS (*Scanning Electron Microscope-Electron Dispersif X Ray Spectrophotometer*) bertujuan untuk mengetahui kualitas katalis dan nanokarbon yang dihasilkan pada berbagai variasi kondisi operasi diantaranya laju, temperatur dan waktu reaksi melalui morfologinya. SEM

memeriksa struktur nanokarbon dengan menembakkan sinar *scanning electron* lalu mengumpulkan elektron-elektron yang diregenerasi. Elektron-elektron ini dikumpulkan, diamplifier, dan ditampilkan di *cathode ray tube* (CRT). Sinar elektron dan hasil scan CRT disinkronisasi sehingga gambar permukaan dari spesimen tersebut dapat ditampilkan. Morfologi permukaan dari nanokarbon diinvestigasi dengan mikroskop *scanning electron*. EDS (Electron Dispersif X-Ray Spectrofotometer) digunakan untuk mengetahui unsur pengotor yang ada pada nanotube karbon yang dihasilkan dan SEM-Maping digunakan untuk mengetahui persebaran unsur. Analisis SEM-EDS dilakukan di Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia, Serpong.

e. TEM (*Transmission Electron Microscopy*)

Karakterisasi ini bertujuan untuk mengetahui distribusi *spatial* fasa katalis, ukuran kristal, struktur kristal, adanya *alloy* pada katalis dan juga nanokarbon. Karakterisasi dengan TEM lebih baik daripada SEM karena menghasilkan gambar dengan perbesaran yang lebih besar dan lebih terang, sehingga dapat diketahui jenis karbon nanotube yang dihasilkan, seperti *single wall* atau *multi wall*, atau jenis lainnya. Secara kualitatif, diameter nanokarbon pun dapat diketahui. Analisis TEM dilakukan di FMIPA UGM, Yogyakarta.



Gambar 3. 5 Alat *Transmission Electron Microscopy* (TEM)

f. BET (Brunauer, Emmett, dan Teller)

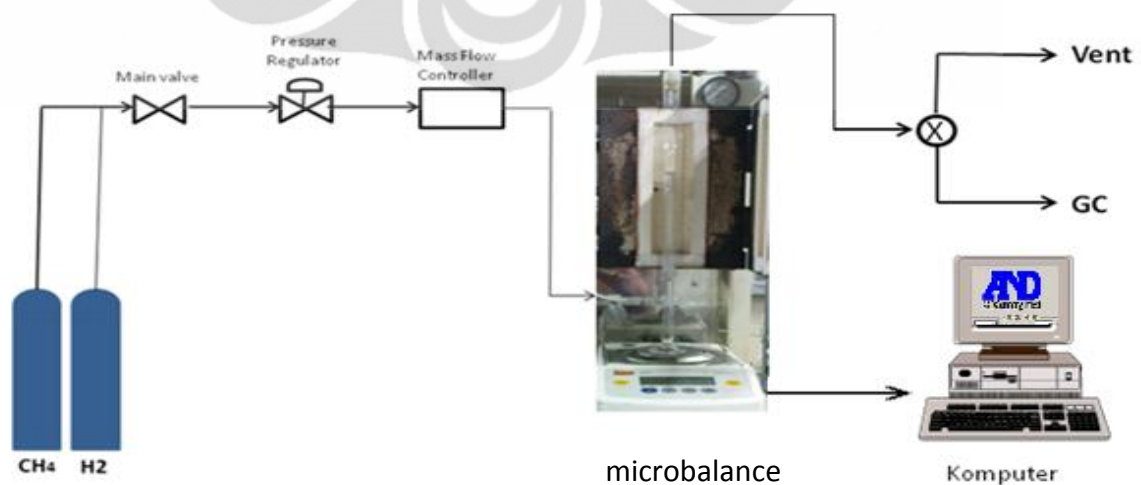
Analisis BET dilakukan untuk mengetahui luas permukaan spesifik pada katalis dan produk nanokarbon (katalis setelah direaksikan metana). Tahapan analisa meliputi penimbangan sampel awal, *degassing* sampel untuk menghilangkan air dan gas-gas sisa/pengotor yang terdapat pada sampel, dan analisa sampel dengan prinsip adsorpsi. Analisis BET menggunakan Autosorb-6 merk QUANTACROME dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dari Bahan Alam Departemen Teknik Kimia FTUI, Depok.



Gambar 3. 6 Alat BET (Brunauer, Emmett, dan Teller)

3.3.3 Set-Up Rangkaian Peralatan

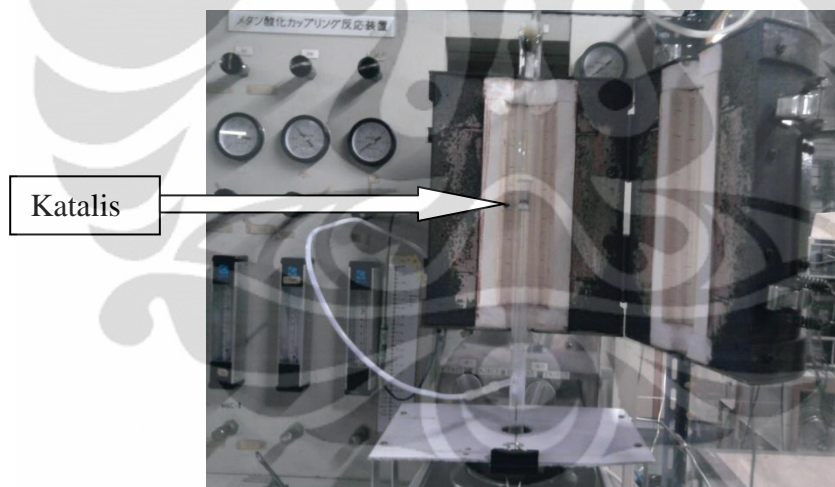
Peralatan pada penelitian ini di *set-up* berdasarkan skema di bawah ini.



Gambar 3. 7 Rangkaian peralatan penelitian



Gambar 3. 8 Reaktor Mikro dengan Mikrobalance



Gambar 3. 9 Reaktor yang terpasang dalam *furnace*

3.3.4 Kalibrasi Alat

Sebelum dilakukan percobaan, dilakukan kalibrasi alat utama yang digunakan, yaitu kalibrasi timbangan, kalibrasi data akuisisi (temperatur *furnace*), kalibrasi *flowmeter* dan kalibrasi kromatografi gas.

3.3.5 Uji Kinerja Katalis

Uji kinerja ini dilakukan untuk mengetahui parameter kualitas nanokarbon. Pada uji kinerja katalis dapat diketahui parameter lain seperti: aktivitas, stabilitas, dan *life time* katalis, selektivitas, *yield* nanokarbon yang terbentuk, dan konversi metana serta morfologinya.

Tabel 3. 2 Matriks Prosedur Penelitian

Prosedur	Suhu (⁰ C)	Waktu (menit)	Laju (mL/menit)	Tekanan (atm)
• Preparasi Katalis				
Larutan prekursor	70	Sampai homogen	-	
Presipitasi	Suhu ruang	90	-	
Pencucian/ Washing	Suhu ruang		-	
Drying	120	300	-	
Kalsinasi	200,350,500 dan 800	@ 60	-	
Reduksi	200	30	20	
• Uji Kinerja Katalis (variasi)	500-750	0-600	40-120	1

3.4 Teknik Pengumpulan Data

Pengumpulan data dilakukan dengan metoda sampling. Data diambil dari beberapa variasi kondisi operasi. Data-data primer yang diambil berupa :

- Properti katalis terutama ukuran partikel nikel dalam katalis
- Berat nanokarbon yang terbentuk dari setiap sampel yang berbeda (Data berasal dari microbalance dengan software A&D) .
- Komposisi dan volume gas keluaran GC
- Bentuk dan properti nanokarbon

a. Variabel yang Tetap :

- Metode preparasi katalis (metode kopresipitasi)
- Komposisi katalis Ni:Cu:Al = 2:1:1
- Tekanan 1 atm selama uji aktivitas
- Berat sampel katalis dan laju alir reaktan (W/F)
- Jenis reaktor (Reaktor *Microbalance*)
- Karakterisasi katalis dan produk nanokarbon

b. Variabel yang dibedakan :

- Laju Reaksi
- Suhu reaksi
- Waktu Reaksi

3.5 Pengolahan Data

- **Konversi Metana**

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

$$X_{CH_4} = \frac{[CH_4 in] - [CH_4 out]}{[CH_4 in]} \times 100\% \quad (3.2)$$

Sementara itu, yield nanokarbon dan selektivitas untuk hidrogen dalam penelitian ini adalah sebagai berikut :

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

BAB 4

HASIL DAN PEMBAHASAN

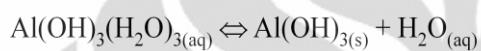
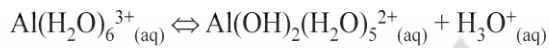
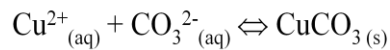
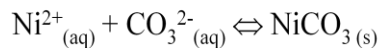
4.1 Preparasi dan Karakterisasi Katalis

Pada reaksi dekomposisi katalitik metana, pemilihan katalis sangatlah penting. Masalah yang sering timbul diantaranya deaktivasi katalis yang terjadi akibat pembentukan karbon pada permukaan katalis (Muradov, 2001). Karbon yang dihasilkan dari perengkahan metana akan membentuk deposit karbon yang dapat menutupi inti aktif katalis sehingga terjadi deaktivasi katalis dan menurunnya *lifetime* katalis (He, Chunnian, 2007).

Pada penelitian ini, katalis yang digunakan merupakan katalis bimetal yaitu Ni sebagai inti aktif, Cu sebagai promotor struktural (*second metal*), dan Al sebagai promotor tekstural. Promotor Cu mempunyai peran pencegah *sintering* karena partikel Cu akan menyisip diantara partikel Ni. Selain itu, promotor Cu memiliki afinitas yang tinggi terhadap struktur grafit yang dapat menghambat terbentuknya lapisan grafit pada permukaan inti aktif (Chen, 2004) sehingga deaktivasi katalis akibat akumulasi karbon yang terlalu cepat dapat dihindari. Promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) sehingga mencegah terjadinya *sintering* dan menjaga diameter partikel Ni tetap kecil. Katalis bimetal memiliki aktivitas yang lebih tinggi dibandingkan katalis monometalik (Naghash, 2004). Sesuai literatur, komposisi terbaik untuk katalis Ni,Cu,Al sebesar 2:1:1 dan dipreparasi dengan metode kopresipitasi (Chen, 2001; Chen, 2004; Naghash,2004). Kelebihan metode kopresipitasi diantaranya dapat menghasilkan campuran yang lebih merata pada skala molekular terhadap variasi unsur katalis dan distribusi inti aktif katalis merata.

Kebutuhan prekursor nitrat untuk preparasi katalis dihitung secara stoikiometrik. Prekursor $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, dan $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan kedalam *demineralized water* pada suhu 50°C menggunakan *hotplate* agar seluruh garam nitrat larut dan membentuk ionnya sambil diaduk menggunakan *stirrer magnetic* untuk mendapatkan larutan yang homogen. Penambahan sodium karbonat sebagai *precipitating agent* dilakukan pada suhu ruang yakni setetes demi setetes hingga pH larutan netral (pH mencapai 7) dan sambil dilakukan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer*.

Endapan yang dapat terbentuk:



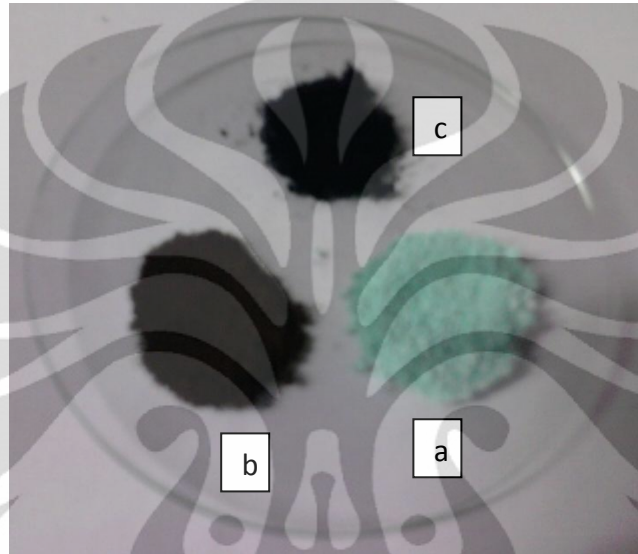
Setelah mencapai pH optimal, dilakukan pengadukan selama 90 menit. Perlu dilakukan kembali pengecekan pH larutan karena pengadukan yang bertujuan menghomogenkan larutan dapat menyebabkan pH larutan kurang dari 7 maka perlu ditambahkan kembali sodium karbonat hingga larutan mencapai pH 7. Larutan (Gambar 4.1) didiamkan semalam untuk proses pengendapan.



Gambar 4. 1 Larutan Katalis

Endapan yang terbentuk dipisahkan dari larutannya sehingga diperoleh wetcake yang masih mengandung ion-ion bebas (Na^+ dan ion logam lainnya) yang dapat menjadi pengotor katalis yang dihasilkan. Pencucian *wetcake* dengan menggunakan campuran aseton dan *deionized water* dengan perbandingan 1:4 dilakukan untuk melepaskan ion-ion bebas (Na^+ dan ion logam lainnya) tersebut. Endapan bersih yang diperoleh merupakan *Layered Double Hydroxides* (LDHs)

yang memiliki suatu struktur mirip *hydrotalcite* yang mengandung unsur Ni, Cu, dan Al dengan formula takovite yaitu $\text{Ni}_6\text{Al}_2(\text{OH})_{16}\cdot\text{CO}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$. Wetcake dikeringkan pada temperatur 120°C selama 5 jam kemudian dikalsinasi dengan kenaikan suhu secara bertahap hingga suhu kalsinasi 800°C . Katalis (Gambar 4.2) berwarna coklat tua dipeletisasi kemudian dihaluskan dan di ayak pada diameter yang sesuai agar katalis memiliki ukuran struktur yang seragam.



Gambar 4. 2 (a) katalis setelah pengeringan; (b) katalis setelah kalsinasi kemudian dihaluskan pada diameter partikel 0,125mm; (c) katalis yang telah direaksikan Metana.

Karakterisasi katalis diperlukan untuk melihat komposisi dan morfologi katalis dengan analisis menggunakan metode XRF (X-Ray Fluorescence), AAS, BET dan SEM.

4.1.1 Karakterisasi XRF dan AAS

Karakterisasi menggunakan X-Ray Fluorescence (XRF) bertujuan untuk mengetahui komposisi katalis agar dapat diketahui kesesuaiannya dengan komposisi yang diharapkan. Hasil Karakterisasi XRF pada katalis setelah di kalsinasi sebesar :

Tabel 4. 1 Hasil karakterisasi menggunakan *X-Ray Flourescence* (XRF)

Komponen	%wt	%mol
Ni	60,41	59,55
Cu	36,41	32,82
Al	3,56	7,63

Pada penelitian ini komposisi katalis Ni,Cu,Al yang diharapkan sebesar 2:1:1 namun hasil uji XRF tersebut memperlihatkan komposisi yang tidak sesuai. Hal ini dapat dikarenakan laju pengendapan masing-masing *material* setelah ditambah dengan prekursor sodium karbonat berbeda-beda sehingga loading hasil akhir pun berbeda. Selain itu, alat XRF pada prinsipnya hanya mendeteksi bagian permukaan saja. Ukuran Al berada pada ukuran nanometer sehingga untuk mendeteksi komponen Al diperlukan Voltase yang lebih besar lagi. Untuk itu, pembuktian komposisi katalis dilakukan dengan pengujian menggunakan AAS. Hasil yang diperoleh :

Tabel 4. 2 Hasil karakterisasi menggunakan AAS

Katalis	Hasil Analisis (%)	Rasio
Cu	13,29	1
Ni	30,62	2
Al	13,00	1

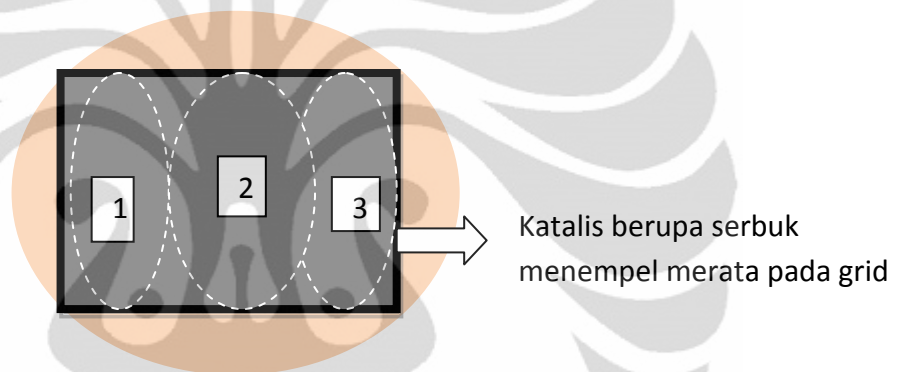
Komposisi katalis aktual sesuai dengan desain komposisi katalis. Data selengkapnya dapat dilihat pada lampiran. Pengujian XRF dilakukan di UI-Salemba dan pengujian AAS dilakukan di Pusat Penelitian Kimia,LIPI.

4.1.2 Karakterisasi BET

Analisis BET dilakukan pada katalis yang telah dikalsinasi (*fresh catalyst*). Luas permukaan katalis sebesar $32,32 \text{ g/m}^2$ dengan luas pori sebesar $103,7\text{\AA}$. Analisis BET dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dari Bahan Alam Departemen Teknik Kimia FTUI, Depok.

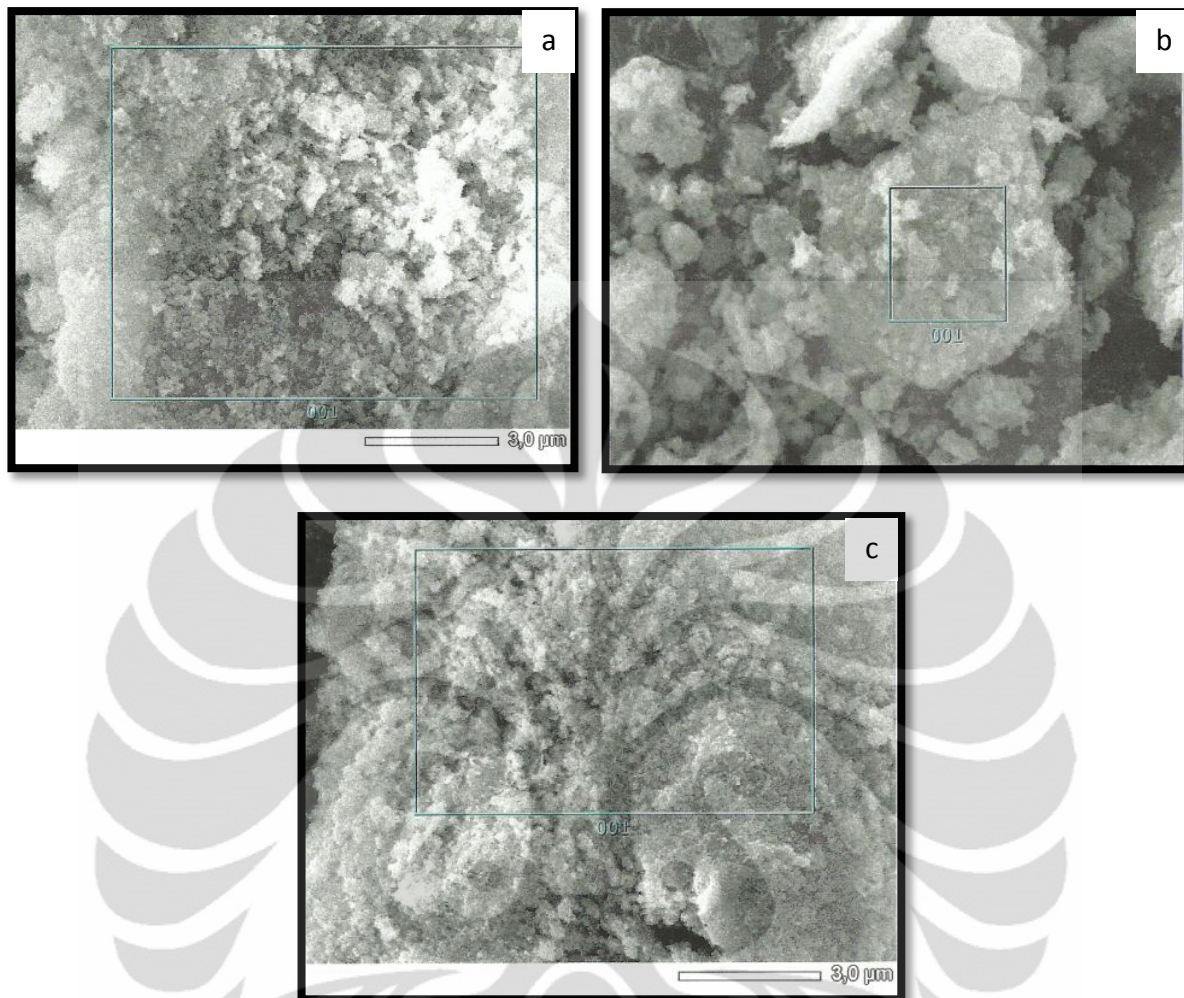
4.1.3 Karakterisasi SEM

Morfologi katalis dapat diketahui melalui karakterisasi SEM dan unsur yang terkandung dalam katalis baik secara kualitatif maupun kuantitatif dapat dianalisis melalui hasil SEM-EDS. Pada pengambilan gambar SEM (Gambar 4.3) dilakukan pada tiga titik yang berbeda agar dapat diketahui pemerataan hasil.



Gambar 4. 3 Titik Pengambilan SEM

Pada ketiga titik area yang berbeda, morfologi katalis terlihat sama (Gambar 4.4). Unsur dan persentase massa yang terkandung dalam katalis pada ketiga area relatif sama (Tabel 4.3) sehingga terlihat bahwa penyebaran hampir merata. Katalis mengandung unsur C, O, Al, Ni, Cu dengan persentasi massa Ni paling besar.

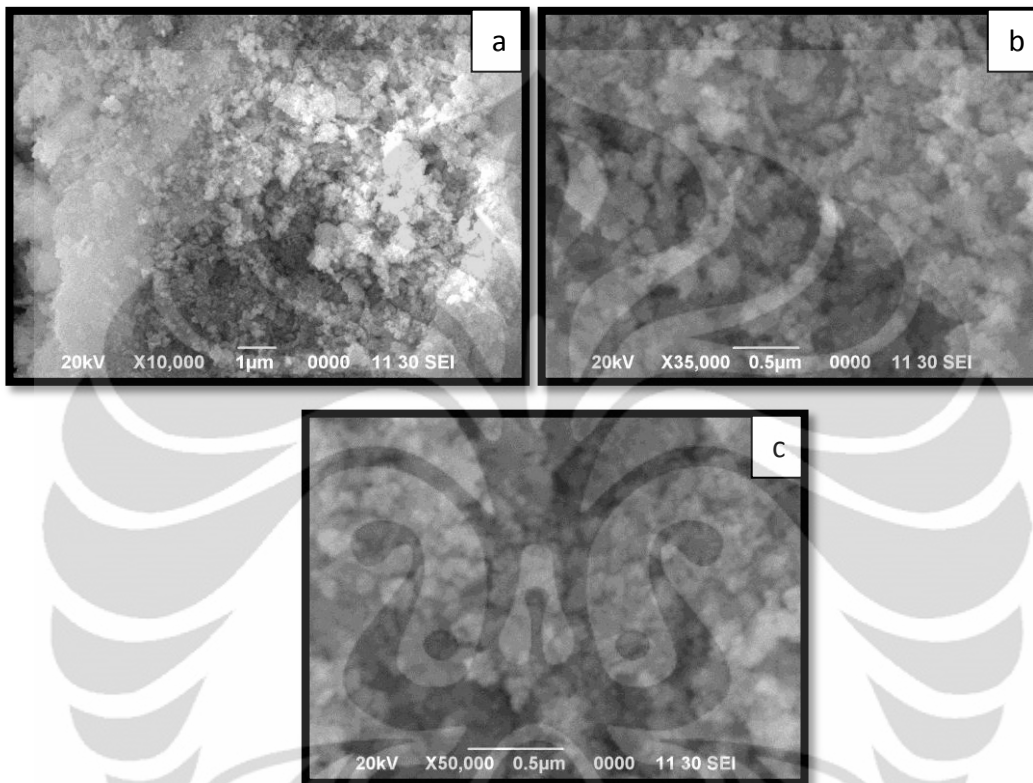


Gambar 4. 4 Hasil SEM katalis pada titik area (a) 1, (b) 2, dan (c) 3

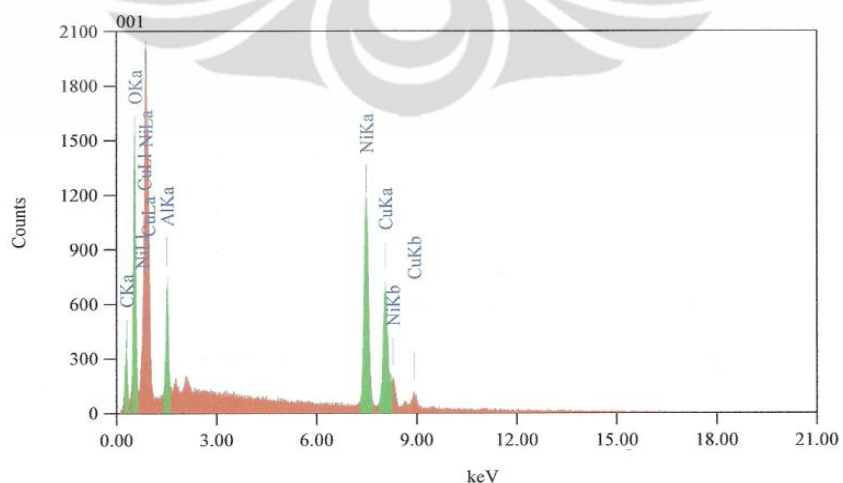
Tabel 4. 3 Hasil EDS katalis pada ketiga titik area

Unsur	Titik area 1	Titik area 2	Titik area 3
	Persentase Massa %	Persentase Massa %	Persentase Massa %
C	26,81	12,48	9,88
O	13,24	28,37	11,35
Al	2,43	4,98	2,74
Ni	35,55	37,09	47,90
Cu	21,97	27,08	28,13

SEM hanya terbatas pada pengambilan gambar morfologi pada permukaannya saja dan pada pengambilannya pun dapat dilihat dengan variasi perbesaran skala (Gambar 4.5). Secara kualitatif, Gambar 4.6 memperlihatkan bahwa unsur Ni cukup banyak terkandung pada katalis.



Gambar 4. 5 Hasil SEM katalis pada titik area 2 dengan perbesaran (a)10.000x, (b)35.000x dan (c)50.000x



Gambar 4. 6 Grafik EDS katalis pada titik area 2

4.2 Aktivitas dan Stabilitas Katalis

Uji aktivitas dan stabilitas katalis berkaitan dengan lamanya waktu reaksi. Aktivitas katalis adalah peran katalis dalam meningkatkan kecepatan reaksi sedangkan stabilitas katalis adalah peran katalis masih dapat difungsikan untuk terkonversi menjadi produk. Hingga pada akhirnya katalis tidak dapat digunakan lagi karena telah terdeaktivasi (*life time catalyst*).

Katalis sebelum direaksikan dengan metana, di reduksi terlebih dahulu dengan hidrogen. Proses reduksi bertujuan untuk untuk mereduksi oksida yang terbentuk saat kalsinasi sehingga ukuran inti aktif katalis menjadi lebih kecil dan diameter nano karbon yang terbentuk menjadi lebih kecil. Selain itu dapat mengubah struktur oksida Ni menjadi logam Ni yang berfungsi sebagai inti aktif untuk pembentukan nanokarbon. Proses reduksi ini dilakukan secara *in-situ* dalam reaktor dengan mengalirkan Hidrogen pada laju 20 mL/mnt ke dalam reaktor. Setelah itu, metana dialirkan untuk proses dekomposisi katalitik metana.

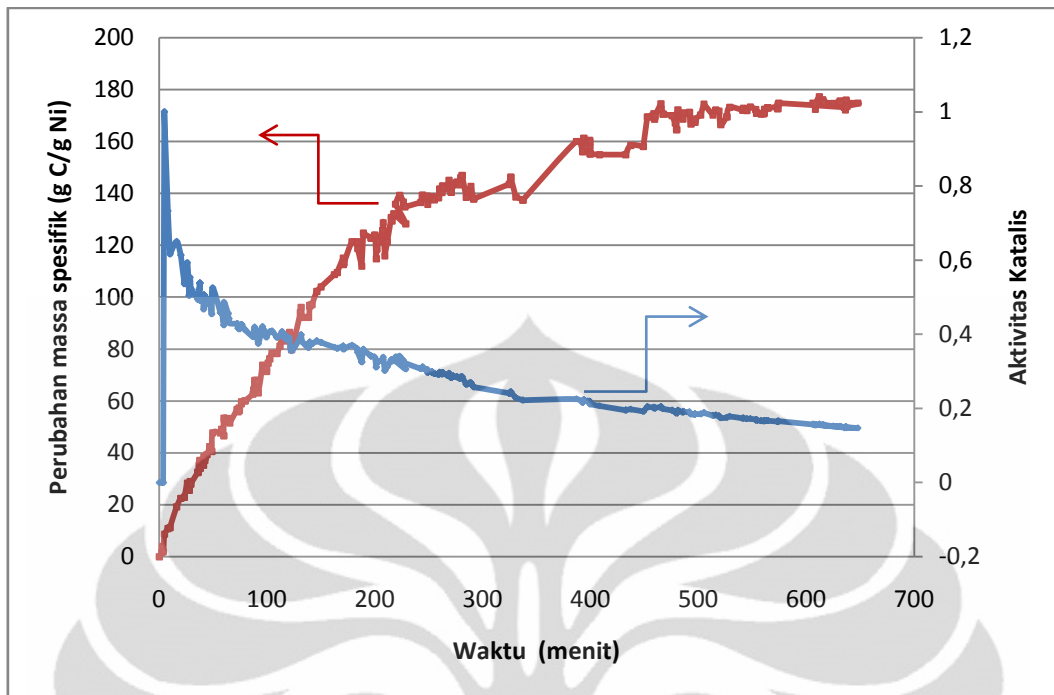
Stabilitas dan aktivitas katalis dilihat dengan metode pendekatan menggunakan microbalance. Data microbalance memiliki keunggulan tersendiri yaitu dapat mengetahui perubahan massa katalis dalam reaktor seiring dengan waktu reaksi. Persamaan yang digunakan pada penentuan aktivitas katalis :

$$r'_c = \frac{\text{rate of carbon formation } (\frac{g_c}{\text{min}})}{\text{mass of Ni } (g_{Ni})}$$

dan

$$a(t) = \frac{(r'_c)_t}{(r'_c)_{max}}$$

r'_c merupakan laju pembentukan karbon dan $a(t)$ merupakan aktivitas katalis. (Rahman, 2006). Gambar 4.7 menunjukkan stabilitas dan aktivitas katalis terhadap waktu reaksi.



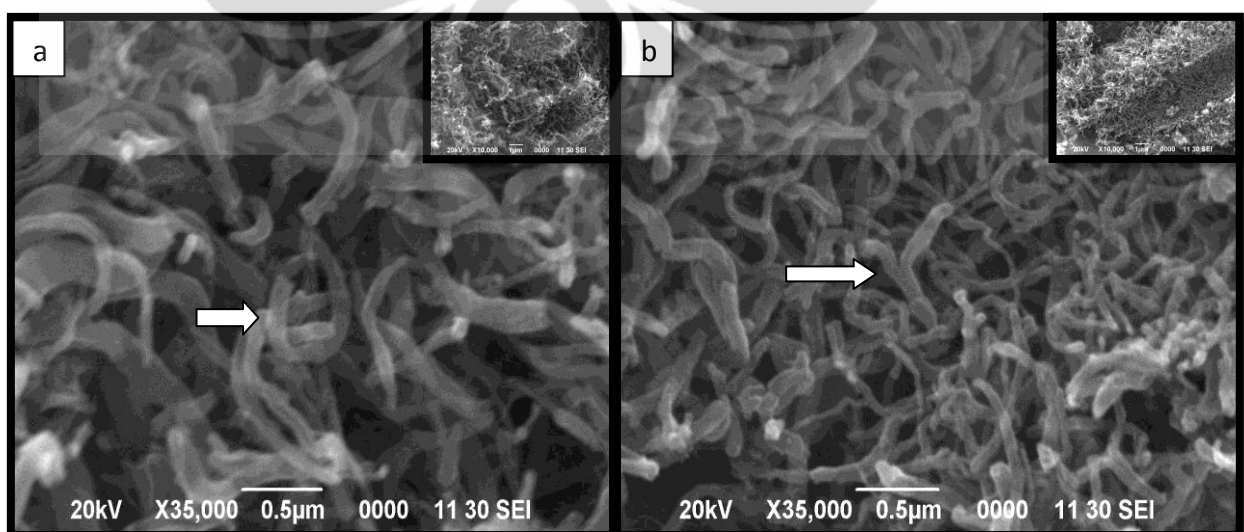
Gambar 4. 7 Pengaruh waktu terhadap stabilitas dan aktivitas katalis

Grafik di atas menunjukkan bahwa katalis dengan jangka waktu reaksi yang cukup lama yaitu 10 jam masih memiliki aktivitas dan stabilitas yang cukup baik. Aktivitas katalis dengan cepat mencapai aktivitas maksimum pada 5 menit pertama kemudian menurun secara drastis hingga aktivitas relatif stabil pada rentang 1 jam hingga 10 jam. Rahman (2006) menemukan fakta bahwa aktivitas katalis mencapai 140 jam hingga pada akhirnya katalis tidak memiliki aktivitas (*fully deactivated*). Stabilitas katalis dapat dilihat pada profil perubahan massa spesifik terhadap waktu. Semakin bertambahnya waktu reaksi maka semakin besar pula perubahan massa spesifik berarti semakin banyak karbon yang terbentuk. Faktor inilah yang mengakibatkan permukaan katalis tertutupi oleh karbon yang semakin lama akan mengarah pada deaktivasi. Pengaruh pertambahan massa spesifik (stabilitas katalis) pun berefek pada wadah katalis dalam reaktor (*holder*) yg digunakan karena dapat saja produk yang dihasilkan melebihi kapasitas volume wadah katalis (*overload*) dlm reaktor (Gambar 4.8). Maka dari itu, pada penelitian ini waktu reaksi dibatasi hanya sampai 10 jam.



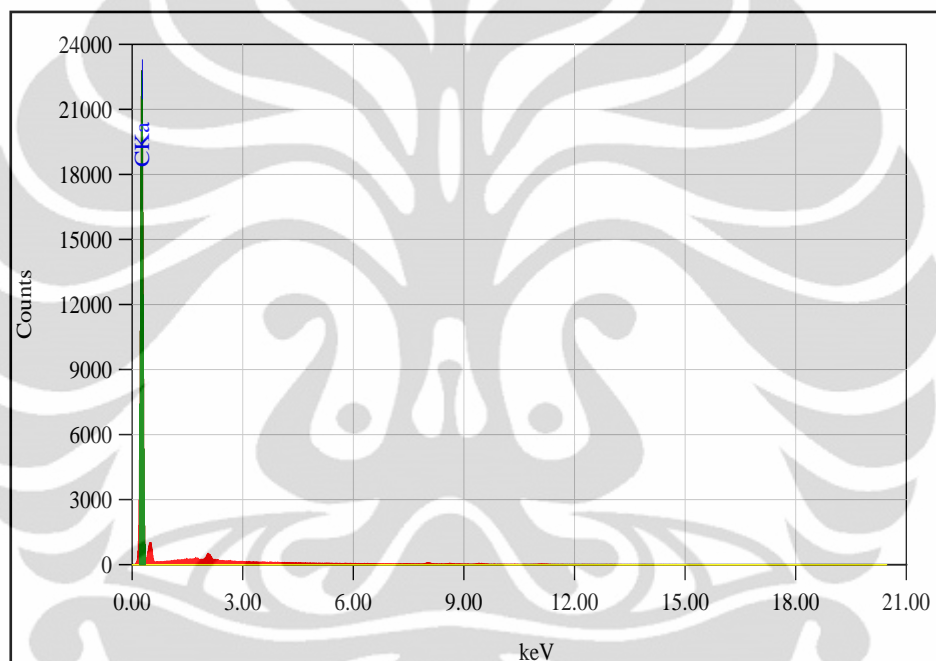
Gambar 4. 8 Wadah katalis dalam reaktor (*holder*) berisi (a) 0,01g *fresh catalyst* dan (b) produk nano karbon setelah 10 jam direaksikan metana.

Perbedaan massa katalis sebelum dan setelah direaksikan selama 10 jam terlihat sekali pertambahannya cukup signifikan (Gambar 4.8). Hal ini memperlihatkan bahwa initial mass cukup berpengaruh terhadap desain reaktor terutama volume wadah katalis (*holder*). Pada penelitian ini, massa katalis awal yang digunakan sebesar 0,01 g. Pada Gambar 4.9 dapat terlihat perbedaan morfologi nano karbon pada suhu reaksi 700°C dengan waktu reaksi 1 jam dan 10 jam.



Gambar 4. 9 SEM produk nano karbon pada waktu reaksi (a) 1jam & (b) 10 jam

Secara morfologi, produk nanokarbon pada waktu reaksi 1 jam (Gambar 4.9(a)) memiliki bentuk yang relatif seragam. Pada waktu reaksi 10 jam, morfologi nanokarbon mulai terdapat percabangan atau menempelnya dua produk. Diameter produk bervariasi. Sebagian besar mengarah pada pembentukan diameter produk yang lebih besar. Terjadi peningkatan besar dalam kerapatan massa (terlihat pada *insert* Gambar 4.9(b)). Hasil SEM-EDS (*energy dispersive spectroscopy*) pada Gambar 4.10 menghasilkan persentase massa didominasi 100% oleh karbon yang berarti produk nanokarbon terbentuk.



Gambar 4. 10 SEM-EDS nanokarbon pada kondisi waktu reaksi 1 jam dan 10 jam.

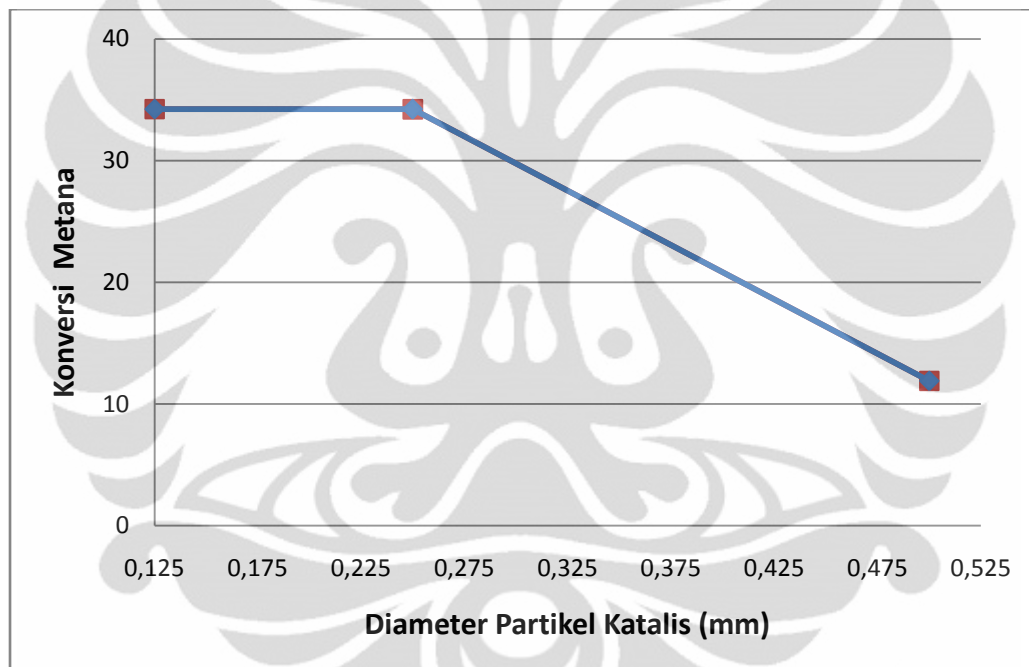
Berdasarkan morfologinya dapat dikatakan bahwa katalis dengan waktu reaksi 10 jam masih memiliki aktivitas dan stabilitas untuk menghasilkan suatu produk nanokarbon.

4.3 Pengaruh Kondisi Operasi

Pada penelitian ini, untuk mengetahui pengaruh kondisi operasi terhadap pertumbuhan Nanokarbon dilakukan dengan memvariasikan beberapa parameter kondisi operasi diantaranya :

4.3.1 Pengaruh Diameter Partikel Katalis

Pemilihan diameter partikel katalis diperlukan untuk mengetahui area yang dikontrol oleh reaksi kimia yaitu menghasilkan konversi yang relatif konstan. Pada daerah tersebutlah katalis dapat terkonversi tanpa adanya pengaruh limitasi tahanan (difusi internal).



Gambar 4. 11 Hubungan antara diameter partikel katalis terhadap konversi metana

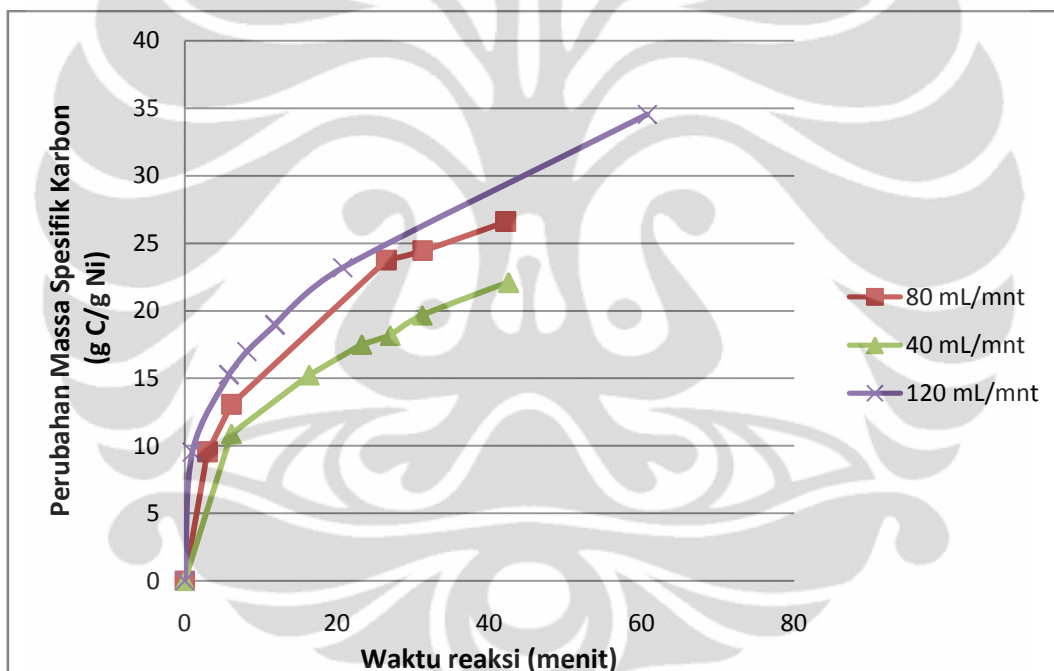
Grafik di atas menunjukkan bahwa konversi metana yang dihasilkan relatif konstan pada rentang diameter partikel 0,125mm - 0,25mm sebesar 34 % dan konversi terus menurun pada diameter partikel di atas 0,25mm. Konversi yang terus menurun dikarenakan adanya faktor limitasi tahanan internal. Pada penelitian ini, diameter partikel yang digunakan sebesar 0,125 mm.

4.3.2 Pengaruh Laju Alir Metana

Pengaruh laju alir metana dapat dilihat melalui beberapa parameter diantaranya perubahan massa spesifik karbon, laju pembentukan karbon, konversi metana dan karakteristik morfologinya. Laju alir berpengaruh terhadap limitasi tahanan eksternal.

- **Perubahan Massa Spesifik Karbon**

Perubahan massa spesifik menunjukkan yield karbon yakni perbandingan antara pertambahan massa selama dekomposisi metana pada *microbalance* dengan massa katalis. Pada Gambar 4.12 menunjukkan pengaruh perubahan massa spesifik karbon pada variasi laju reaksi.

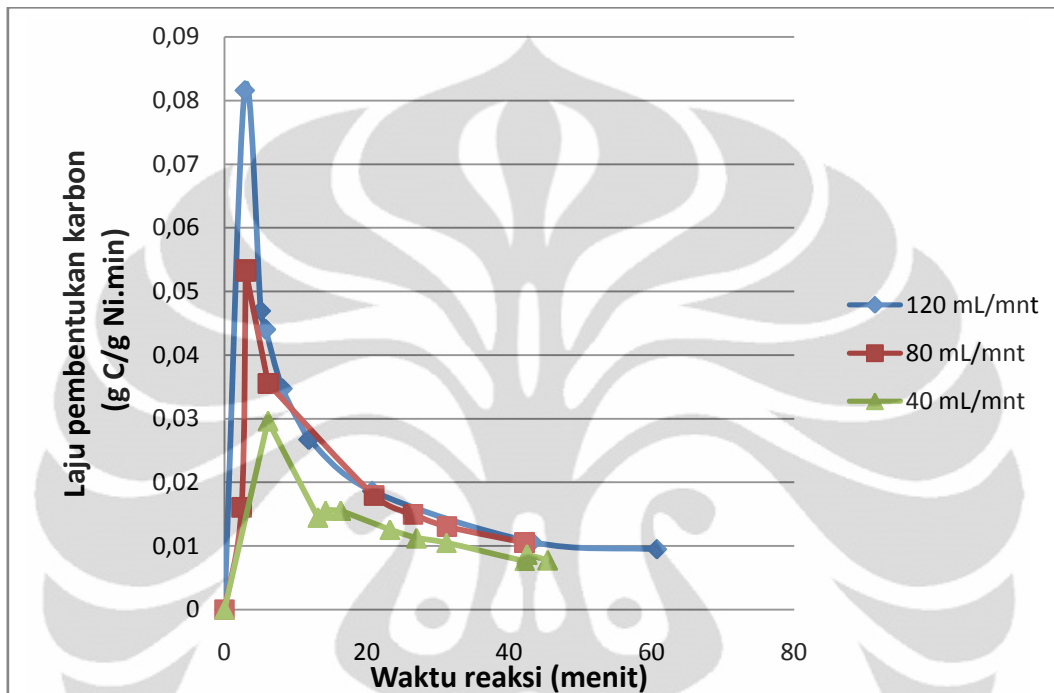


Gambar 4. 12 Hubungan perubahan massa spesifik karbon terhadap waktu reaksi

Pada grafik terlihat bahwa laju alir metana pada 120 mL/mnt memiliki perubahan massa spesifik karbon paling tinggi namun perubahan massa spesifik karbon tiap laju reaksi tidak berbeda secara signifikan. Profil grafik adalah semakin bertambahnya waktu maka perubahan massa spesifik semakin bertambah. Hal ini dikarenakan pertambahan massa selama dekomposisi katalitik metana terus bertambah yang berarti semakin banyak karbon yang terbentuk dan dibandingkan dengan massa katalis yang besarnya tetap sehingga perubahan massa spesifik karbon terus meningkat.

- **Laju Pembentukan Karbon**

Laju pembentukan karbon menunjukkan besarnya pembentukan karbon yakni perbandingan perubahan massa spesifik dengan waktu reaksi. Gambar 4.13 menunjukkan hubungan antara laju pembentukan karbon pada variasi laju reaksi.

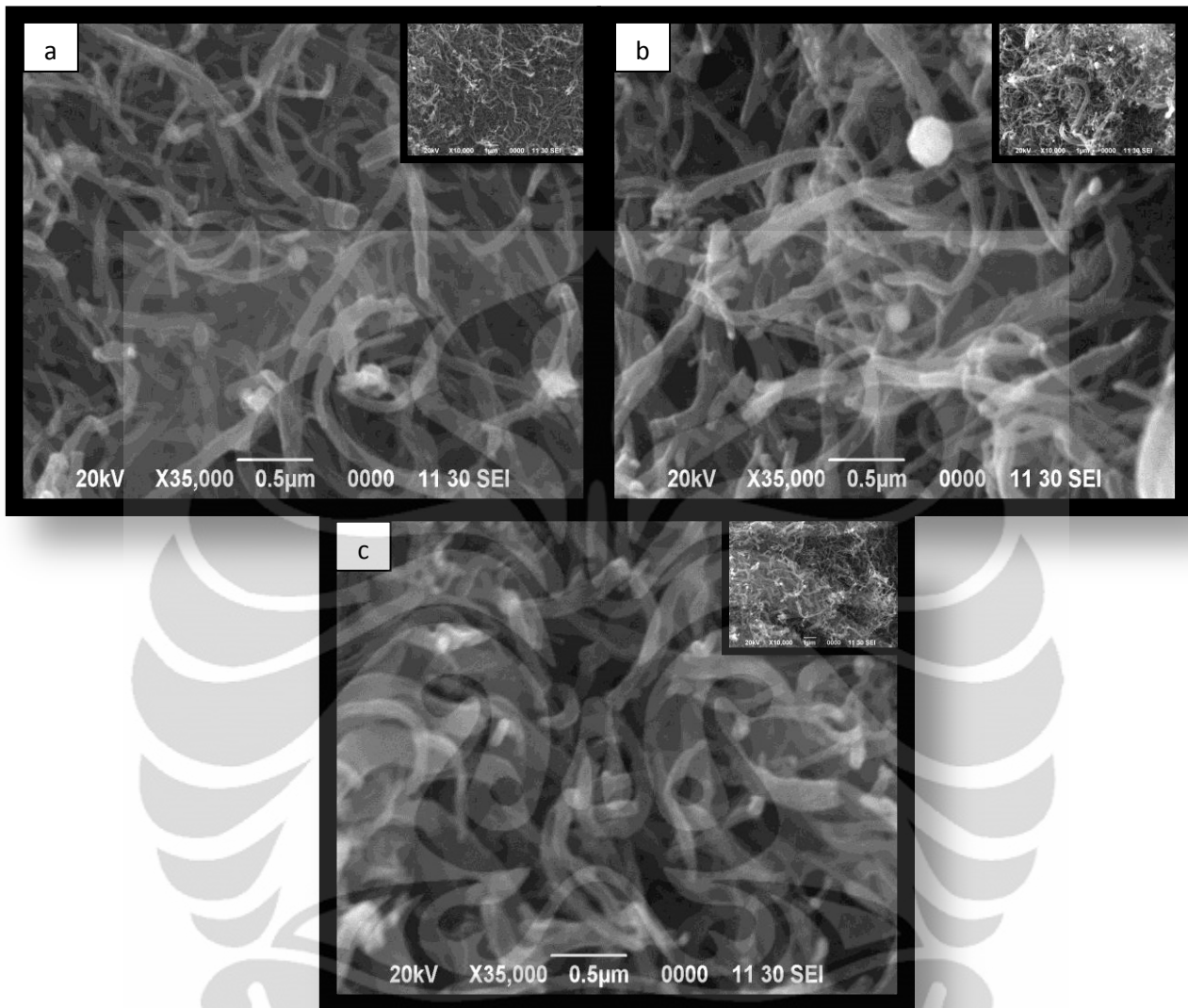


Gambar 4. 13 Hubungan laju pembentukan karbon terhadap waktu reaksi.

Grafik di atas memperlihatkan bahwa laju pembentukan karbon paling tinggi berada pada laju alir metana 120 mL/mnt. Profil laju pembentukan karbon adalah meningkat 3 menit pertama kemudian menurun secara drastis. Hal ini dikarenakan pembentukan karbon optimal pada awal reaksi.

- **Karakterisasi Produk Nano Karbon**

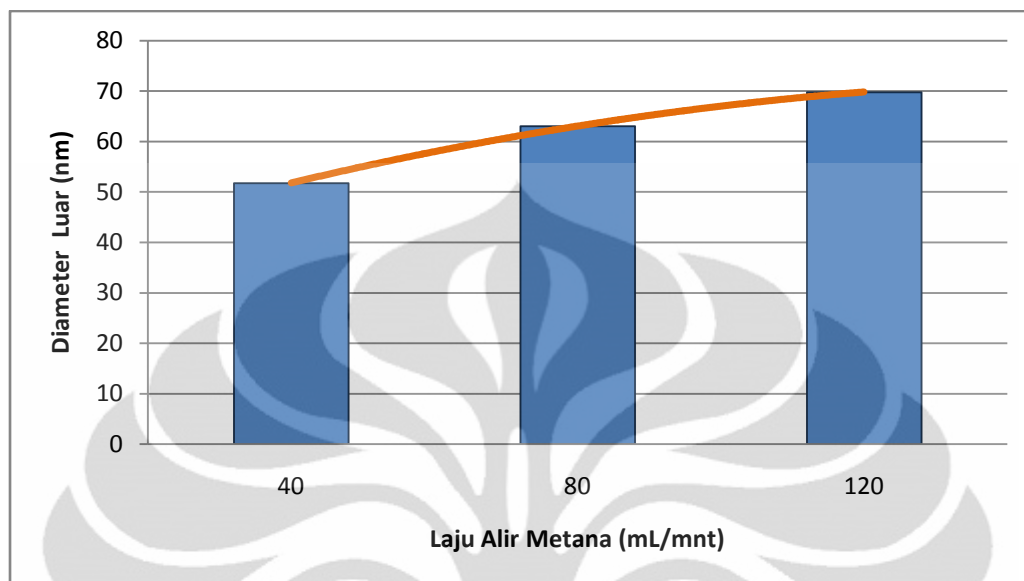
Karakterisasi dilakukan untuk melihat pengaruh variasi laju reaksi terhadap morfologi produk nanokarbon dengan pengujian SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Gambar 4.14 menunjukkan morfologi nanokarbon pada suhu reaksi 700⁰C, waktu reaksi 1 jam dengan variasi laju alir metana yaitu 40 mL/mnt, 80 mL/mnt dan 120 mL/mnt. Perbesaran gambar pada 35.000x dengan *insert* gambar pada perbesaran 10.000x.



Gambar 4. 14 SEM dari morfologi CNT pada variasi laju (a) 40, (b) 80 dan (c)120mL/mnt

Pada gambar di atas, dapat dikatakan produk nanokarbon yang terbentuk adalah CNT (*Carbon Nano Tube*). Secara visual pada laju alir 40 mL/mnt, morfologi produk terlihat masih berukuran kecil atau lebih pipih (Gambar 4.14a) dengan diameter yang relatif belum seragam yaitu pada rentang 45-56 nm. Begitupun pada laju reaksi 80 mL/mnt (Gambar 4.14b) namun sudah terlihat diameter produk sebagian mulai membesar yaitu pada rentang 56-90 nm dan terlihat adanya logam pada ujung nanotube. Terdapat unsur Ni (katalis) yang terenkapsulasi. Morfologi CNT terbaik pada laju alir metana 120 mL/mnt (Gambar 4.14c) dengan struktur lebih halus dan diameter yang cukup seragam.

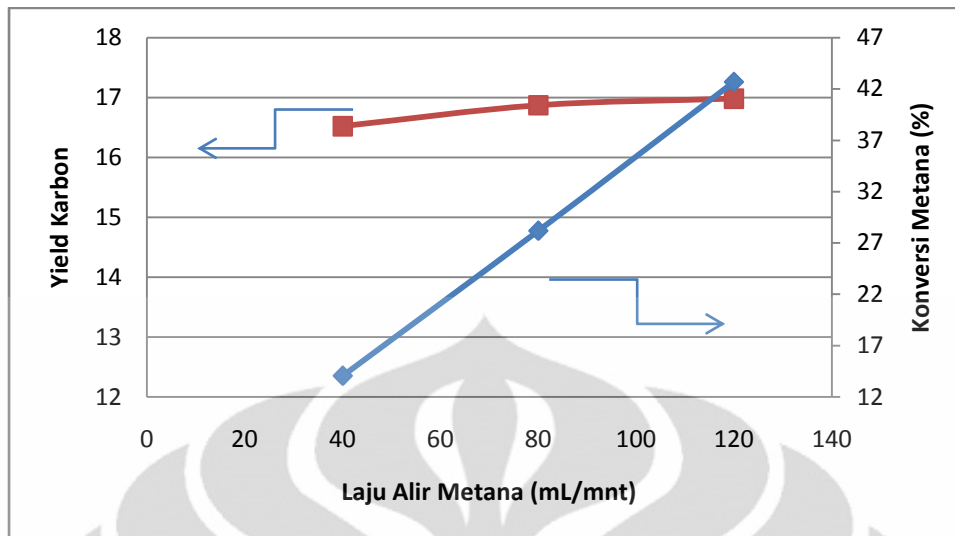
Terlihat pada Gambar 4.15 bahwa semakin besar laju alir metana maka semakin besar pula diameter produk nanokarbon yang terbentuk.



Gambar 4. 15 Hubungan antara diameter CNT terhadap laju reaksi.

Peningkatan diameter tidak terlalu signifikan. Diameter rata-rata terbesar berada pada laju alir metana 120 mL/mnt sebesar 69,78 nm. Diameter rata-rata CNT pada laju alir metana 40 mL/mnt dan 80 mL/mnt secara berurutan sebesar 51,77 nm dan 63,03 nm.

Pada penelitian ini, laju alir metana yang digunakan sebesar 120 mL/mnt maka space time yang berlaku sebesar 0,005 g min/mL. Menurut literatur (Purwanto,2009) space time terbaik untuk menghasilkan konversi optimum sebesar 0,006 g min/mL. Namun penelitian tersebut hanya terbatas pada tiga variasi dengan rentang yang cukup besar. Terlihat pada Gambar 4.16 dan Tabel 4.4 dengan space time 0,005 g min/mL pada laju 120 mL/mnt dan massa katalis sebesar 0,01g diperoleh konversi dan (gambar 4.14) morfologi yang cukup baik.



Gambar 4. 16 Hubungan yield karbon dan konversi metana terhadap laju alir

Tabel 4. 4 Nilai konversi metana dan yield karbon pada variasi laju alir metana

Laju (mL/mnt)	Konversi (%)	Yield
40	14,05	16,52
80	28,17	16,87
120	42,68	16,98

Semakin besar laju reaksi maka semakin besar nilai konversi metana dan berbanding lurus dengan yield karbon namun kenaikannya tidak terlalu signifikan. Kenaikan konversi pengaruh dari adanya limitasi tahanan eksternal. Berdasarkan beberapa parameter di atas, semakin besar laju reaksi maka semakin besar pula yield karbon, laju pembentukan karbon, diameter nanokarbon, dan konversi metana. Serta morfologi nanokarbon yang terbentuk yaitu CNT semakin baik dan seragam. Maka pada penelitian ini, laju alir metana yang digunakan sebesar 120 mL/mnt.

4.3.3 Pengaruh Waktu Reaksi

Pada penelitian ini, pengaruh waktu reaksi terhadap karakteristik nanokarbon ditunjukkan melalui beberapa parameter diantaranya perubahan massa spesifik, laju pembentukan karbon dan karakteristik produk.

- **Perubahan Massa Spesifik dan Laju Pembentukan Karbon**

Pada Tabel 4.5 menunjukkan besarnya perubahan massa spesifik dan laju pembentukan karbon terhadap waktu reaksi pada kondisi suhu reaksi sebesar 700°C.

Tabel 4. 5 Perubahan massa spesifik karbon dan laju pembentukan karbon dengan variasi waktu reaksi.

t (menit)	Perubahan Massa Spesifik (gC/gNi)	Laju Pembentukan Karbon (gC/gNi.min)
60	17,94	1,91
40	15,21	3,55
20	12,52	3,75
5	6,18	6,43

Tabel di atas memperlihatkan bahwa semakin bertambahnya waktu reaksi maka perubahan massa spesifik karbon semakin meningkat dan laju pembentukan karbon semakin menurun. Hal ini menandakan bahwa semakin banyak karbon yang terbentuk yakni terjadi deposit karbon sehingga laju pembentukan karbon pun menjadi menurun. Pada 5 menit pertama adalah waktu optimal dalam laju pembentukan karbon.

- **Karakterisasi Produk Nano Karbon**

Karakterisasi dilakukan dengan pengujian TEM (*Tranmission Electron Microscopy*). Pengujian ini bertujuan untuk melihat pengaruh variasi waktu reaksi terhadap morfologi produk nanokarbon. Zhao, et.all.(2007) menyimpulkan bahwa waktu reaksi akan mempengaruhi morfologi dan diameter produk nano karbon. Besarnya diameter nanokarbon dapat diketahui melalui karakterisasi dengan perhitungan menggunakan persamaan *Scherer* :

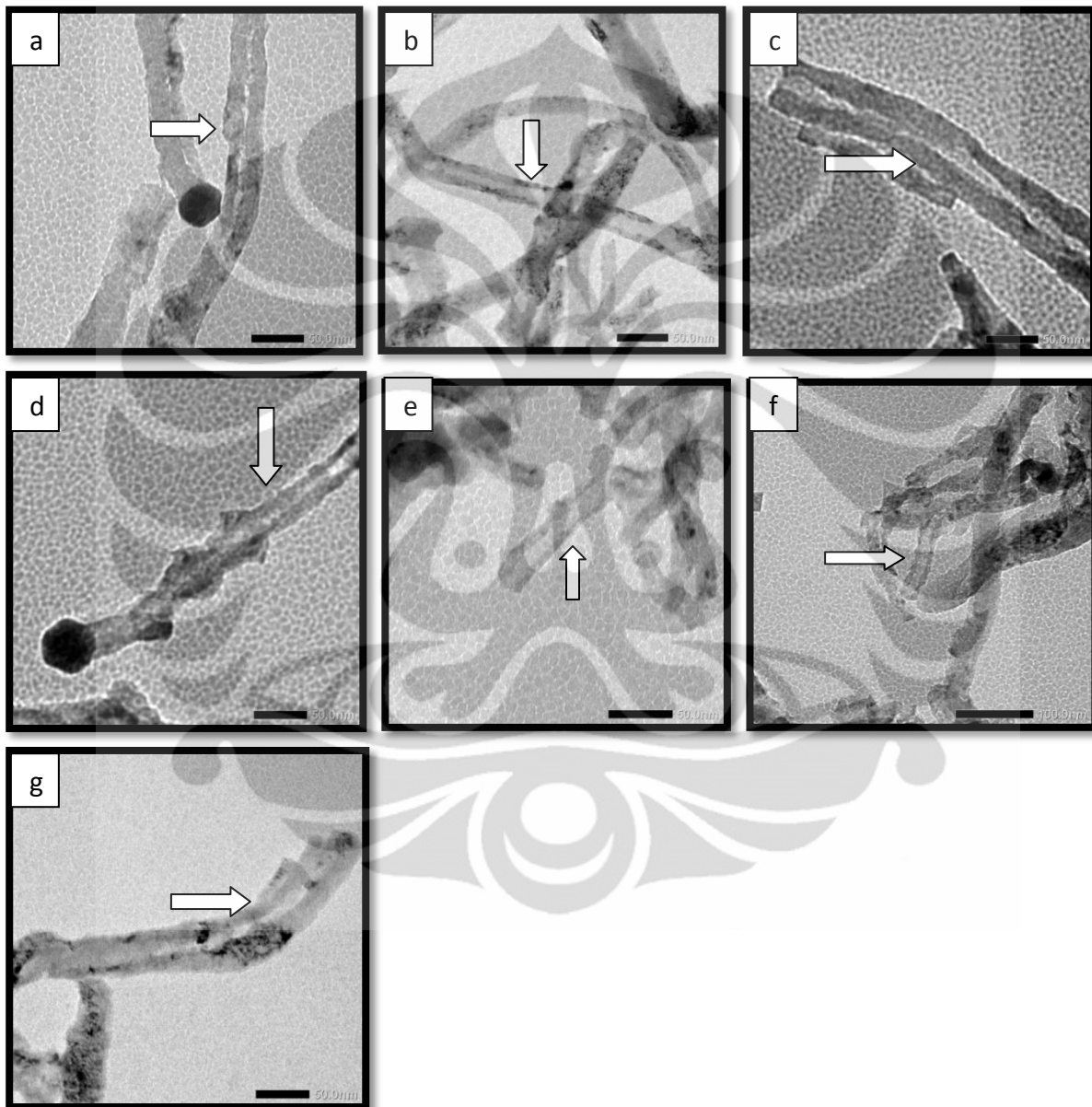
$$D = \frac{0.89\lambda}{\beta_d \cos \theta} \times \frac{180^\circ}{\pi}$$

Keterangan : D = diameter nanokarbon / ukuran kristal

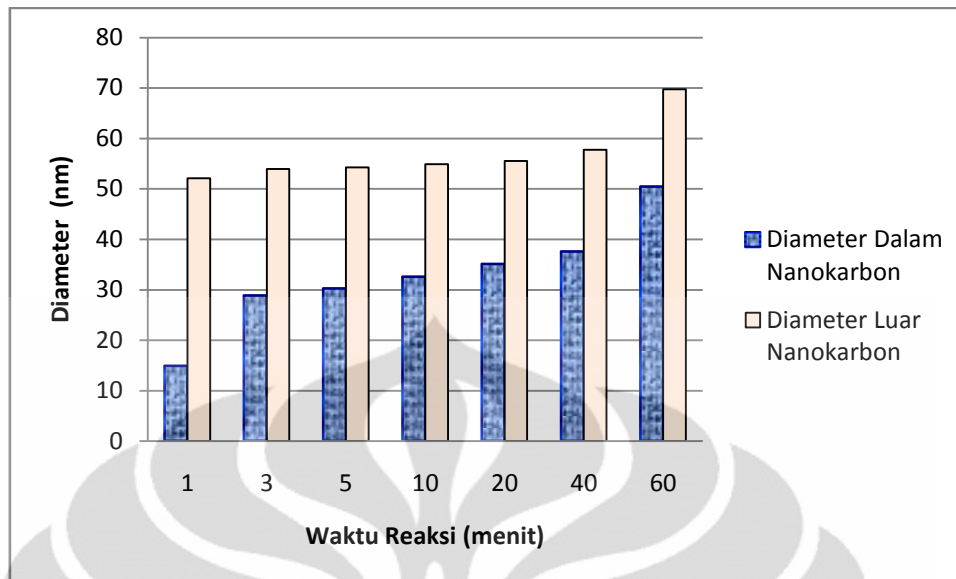
λ = panjang gelombang radiasi sinar X (1.54056 Å)

β_d = lebar setengah tinggi *peak* tertinggi

Berdasarkan perhitungan, diperoleh diameter nanokarbon pada suhu reaksi 700°C dengan variasi waktu reaksi 1-60 menit berada pada rentang 52-70 nm.

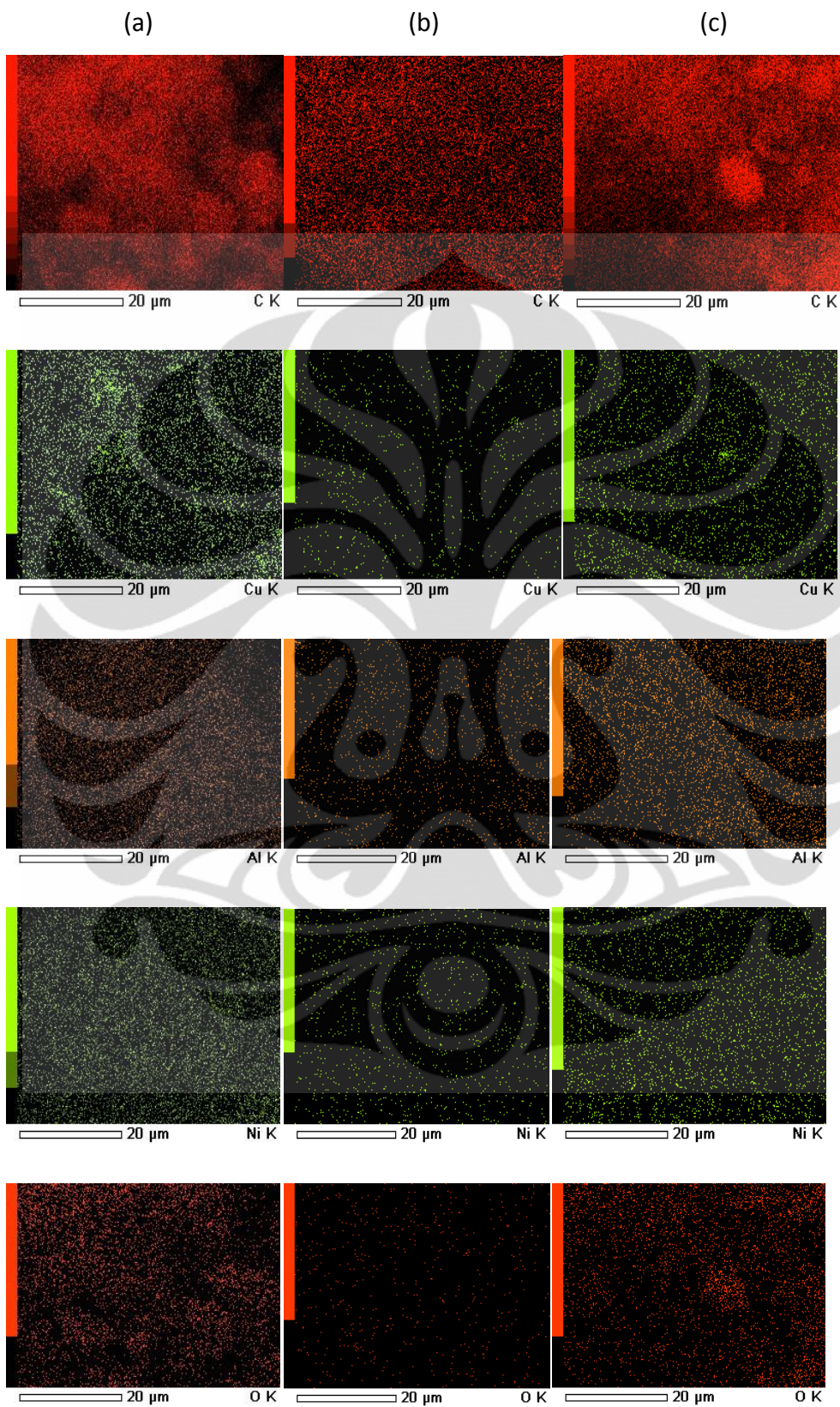


Gambar 4. 17 Morfologi CNT dengan variasi waktu (a)1menit, (b)3menit, (c)5menit, (d)10menit, (e)20 menit, (f)40menit, dan(g)1jam.



Gambar 4.18 Diameter dalam CNT pada variasi waktu reaksi

Pada penelitian ini, metana direaksikan pada temperatur 700°C secara morfologi dapat dikatakan produk yang dihasilkan sudah terbentuk *Carbon Nano Tube*. Hal ini selaras dengan penelitian sebelumnya (Chen,2004). Gambar 4.17 memperlihatkan morfologi CNT dan Gambar 4.18 memperlihatkan diameter CNT pada variasi waktu reaksi. Pada waktu reaksi 1 menit (Gambar 4.17a) sudah terlihat bentuk CNT (*Carbon Nano Tube*) dengan diameter yang sangat kecil dan dinding cukup tebal. Semakin bertambahnya waktu reaksi maka diameter CNT semakin besar. Waktu reaksi 10 menit (Gambar 4.17d) terbentuk CNT dengan ketebalan dinding yang tidak merata. Pada waktu reaksi 20 menit (Gambar 4.17e) terlihat morfologi CNT dengan kualitas terbaik yaitu lebih bersih dan ketebalan dinding produk lebih seragam. Persebaran unsur (Gambar 4.19) relatif lebih merata. Sesuai dengan peneliti sebelumnya bahwa 20 menit merupakan waktu terbaik (Wulan,2009). Struktur CNT mulai terlihat amorf pada waktu reaksi 40 menit (gambar 4.17f) dan 60 menit (gambar 4.17g) yang memperlihatkan morfologi CNT dengan dinding mulai bercabang. Semakin lama waktu reaksi maka pada morfologi CNT terlihat semakin banyak karbon amorf yang terbentuk. Hal ini dikarenakan katalis yang digunakan dengan waktu reaksi yang lama telah tertutupi oleh karbon sehingga pada reaksi selanjutnya kurang terarah ke pembentukan karbon nanotube yang diinginkan. Kualitas karbon nanotube yang terbentuk semakin menurun.



Gambar 4. 19 Hasil SEM-Mapping pada variasi waktu reaksi (a)3menit,(b)20menit dan (c) 60 menit

Gambar 4.19 (b) memperlihatkan bahwa persebaran unsur yang terkandung pada nanokarbon merata pada waktu reaksi 20 menit (Gambar 4.19 b). Sesuai dengan morfologi (Gambar 4.17e) nanokarbon yang terbentuk yakni lebih bersih dan baik. Pada waktu reaksi 3 menit (Gambar 4.19 a) dan 60 menit (Gambar 4.19 c), masih ada penumpukan unsur yang berkumpul pada satu area tertentu saja namun terlihat relatif merata. Unsur karbon mendominasi dibandingkan dengan unsur lainnya.

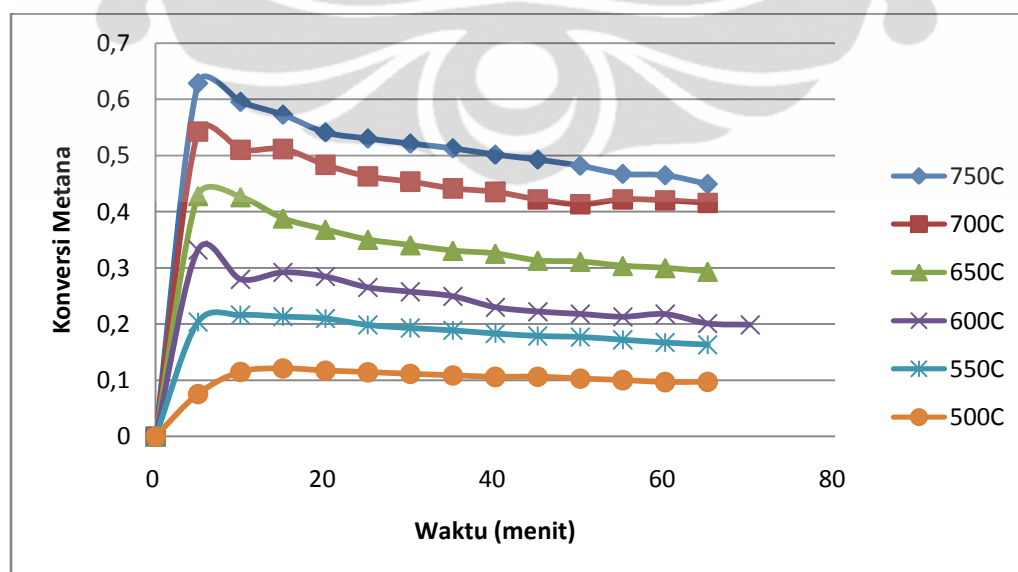
Lee and Park (2002) menyimpulkan bahwa CNT tumbuh dengan rentang diameter luar 20-150 nm. Pada penelitian ini, diameter dalam berada pada rentang 14-51 nm dan diameter luar berada pada rentang 52-70 nm maka dapat dikategorikan bahwa produk adalah CNT dengan morfologi MWNT dan waktu reaksi terbaik pada penelitian ini berada pada 20 menit.

4.3.4 Pengaruh Suhu Reaksi

Suhu reaksi sangat berpengaruh terhadap pertumbuhan nanokarbon.

- **Konversi Metana**

Konversi metana menunjukkan seberapa banyak metana yang terkonversi menjadi produk, baik produk utama (hidrogen dan karbon) maupun hasil sampingan (karbon monoksida dan karbon dioksida, bila terbentuk). Produk-produk berupa gas dapat dideteksi dari GC. Profil konversi metana terhadap waktu dengan variasi suhu reaksi terlihat pada Gambar 4.20.

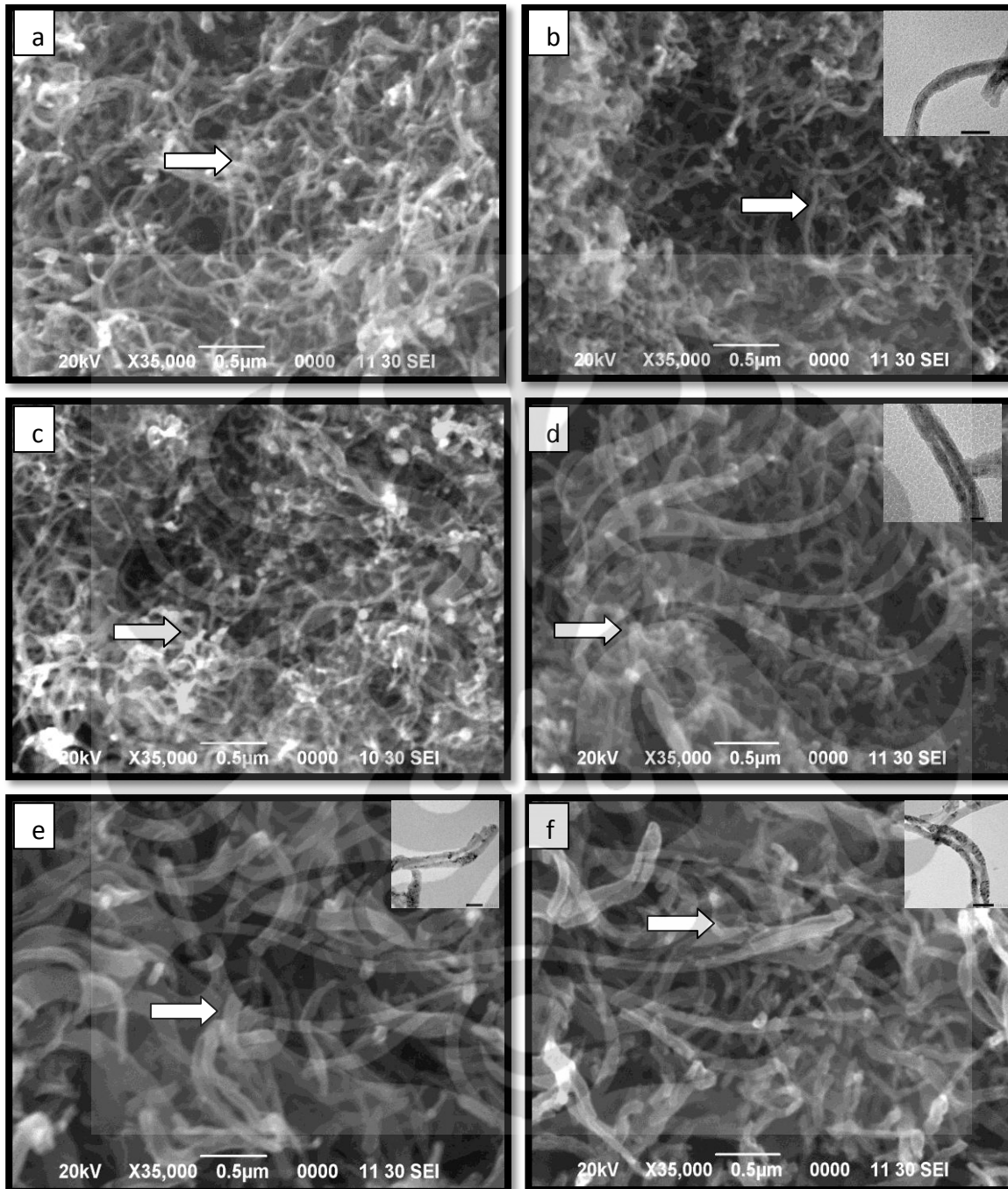


Gambar 4. 20 Konversi metana pada variasi suhu reaksi.

Gambar 4.20 memperlihatkan bahwa semakin besar suhu reaksi maka semakin besar pula metana yang terkonversi menjadi produk. Hal ini terjadi karena reaksi dekomposisi metana merupakan reaksi endotermik sehingga peningkatan suhu reaksi mengakibatkan konversi semakin tinggi. Pada suhu reaksi 750⁰C diperoleh konversi rata-rata sebesar 52% dan konversi tertinggi sebesar 63% dengan penurunan konversi yang cukup menurun. Pada suhu reaksi 700⁰C, konversi tertinggi 54% dan konversi rata-rata 46%. Sedangkan pada suhu reaksi 650⁰C, 600⁰C, 550⁰C dan 500⁰C diperoleh konversi tertinggi secara berurutan sebesar 43%, 33%, 22% dan 12% dengan konversi rata-rata secara berurutan sebesar 34%, 25%, 19% dan 11%.

- **Karakterisasi Produk Nano Karbon**

Karakterisasi bertujuan untuk mengetahui morfologi produk yang terbentuk baik dari permukaan katalis maupun secara mendetail. Karakterisasi yang digunakan adalah SEM dan TEM sehingga dapat dianalisis bentuk produk yang terbentuk sesuai variasi temperatur. Hasil SEM (Gambar 4.21) memperlihatkan morfologi produk pada waktu reaksi 1 jam sedangkan TEM (Gambar 4.22) memperlihatkan morfologi produk pada waktu reaksi 3 menit dengan variasi suhu reaksi (500⁰C-750⁰C).



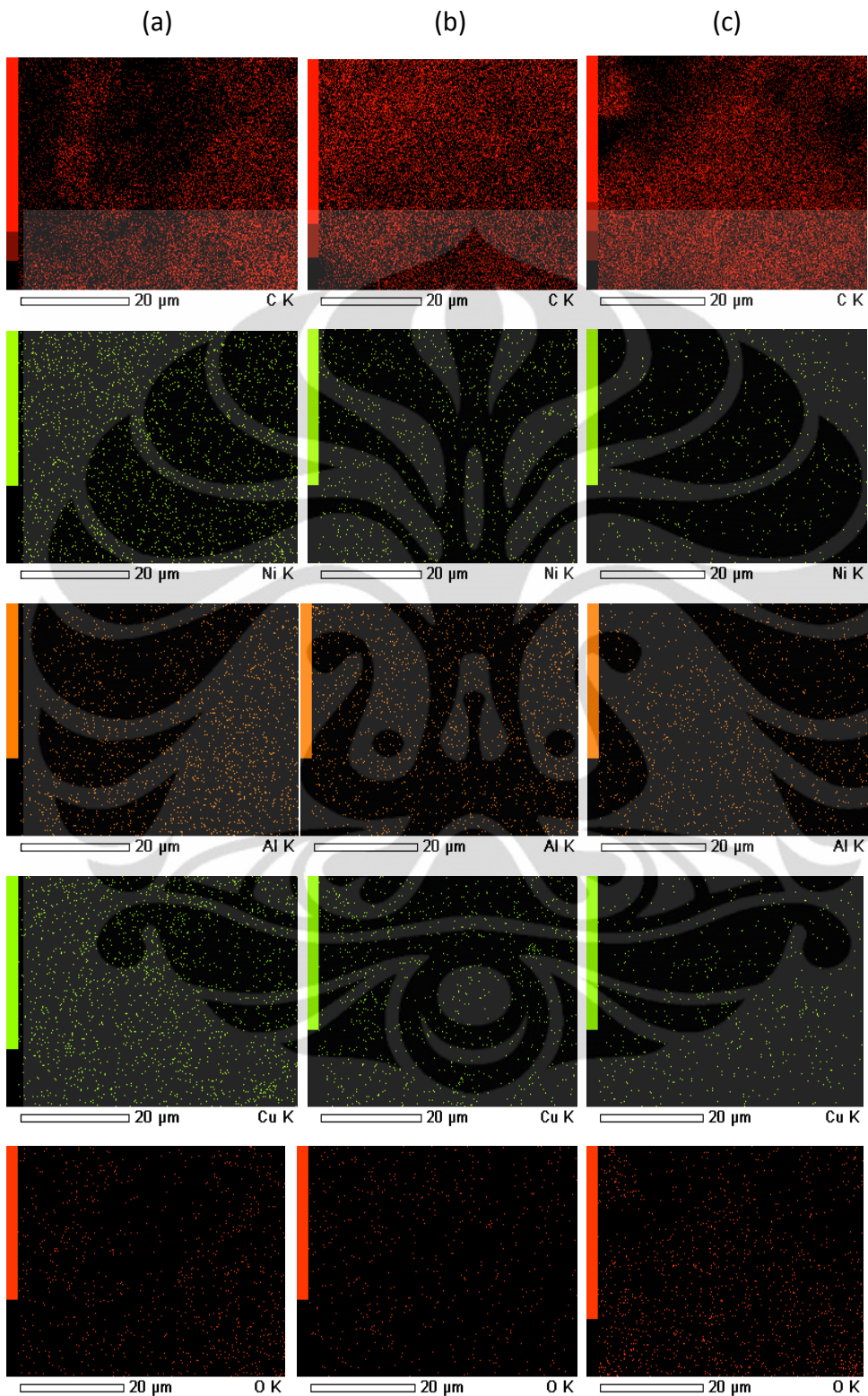
Gambar 4. 21 SEM dan TEM produk nanokarbon pada variasi suhu reaksi (a)500⁰C(titik1),(b)550⁰C(titik1),(c)600⁰C(titik3),(d)650⁰C(titik 1),(e)700⁰C(titik1),(f)750⁰C (titik 3)

Pada temperatur 650⁰C sudah mulai terlihat bentuk nanokarbon dengan diameter terlihat lebih kecil (pipih) sedangkan pada temperatur 700⁰C terlihat bentuk dan diameter nano karbon lebih seragam. Pada temperatur 750⁰C, bentuk dan diameter nanokarbon mulai membesar dan tidak teratur. Morfologi Nanokarbon yang terbentuk pada suhu reaksi 500⁰C, 550⁰C dan 600⁰C relatif terdapat logam katalis yang ter-enkapsulasi. Hal ini terlihat pada SEM-EDS (Tabel 4.7) bahwa pada suhu reaksi 500⁰C, 550⁰C dan 600⁰C masih terdapat unsur Ni dan Cu. Semakin meningkat suhu reaksi maka semakin besar pula persentase massa karbon yang terbentuk. Pembentukan karbon di atas permukaan katalis melebihi tingkat pertumbuhan nanokarbon mengakibatkan enkapsulasi partikel katalis yang aktif (Piao, Li, Chen, Chang, & Lin, 2002; Snoeck, Froment, & Fowles, 1997). Persebaran unsur dapat dilihat pada Gambar 4.22. Pada suhu 700⁰C persebaran karbon lebih merata.

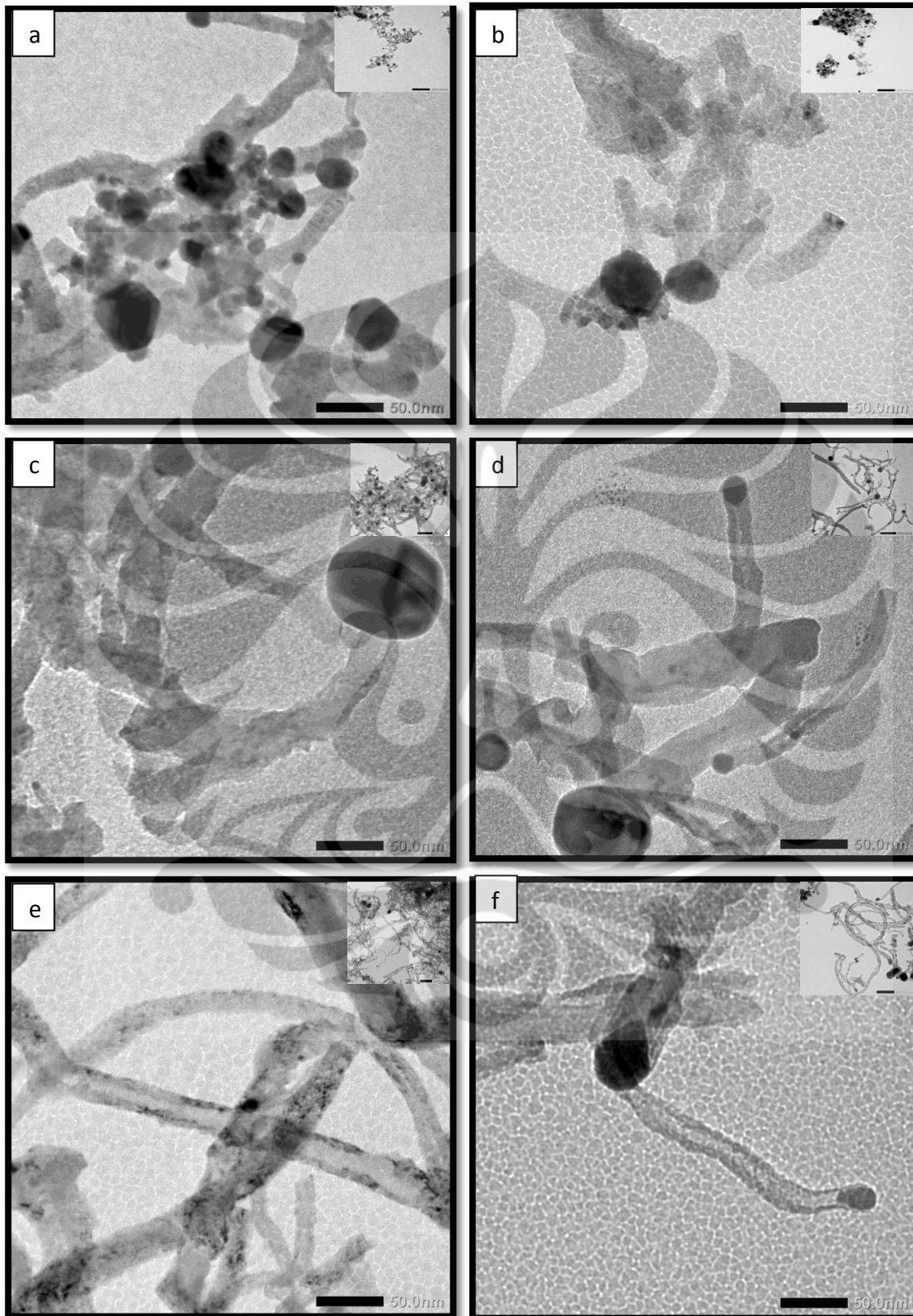
Tabel 4. 6 SEM-EDS nano karbon dengan variasi suhu reaksi.

Suhu Reaksi (⁰ C)	500	550	600	650	700	750
Unsur	% massa					
C	94,94	96,25	97,93	100	100	100
Cu	2,44	0,46	1,54			
Ni	2,62	3,228	0,52			

SEM hanya melihat morfologi pada permukaan saja sedangkan TEM melihat morfologi secara mendalam sehingga klasifikasi jenis bentuk nanokarbon yang terbentuk berdasarkan variasi suhu reaksi dapat ditentukan (Gambar 4.23).

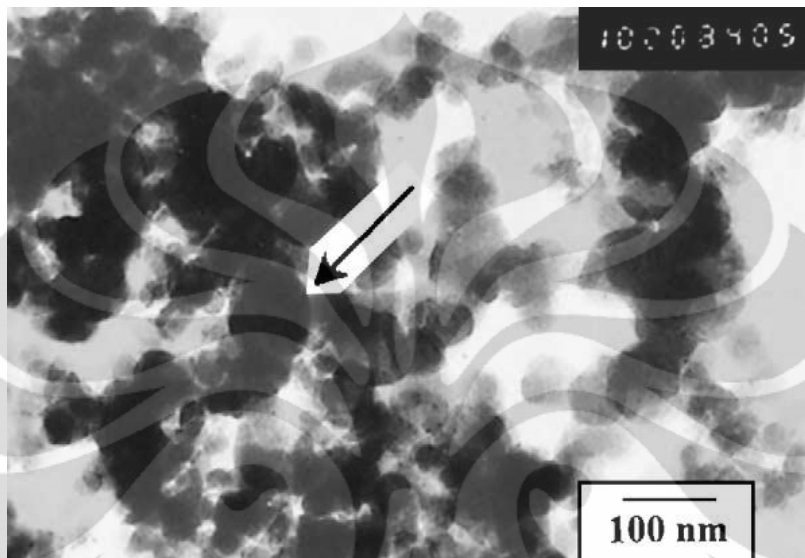


Gambar 4. 22 Hasil SEM-Mapping pada variasi suhu reaksi (a)550⁰C,(b)700⁰C dan (c) 750⁰C



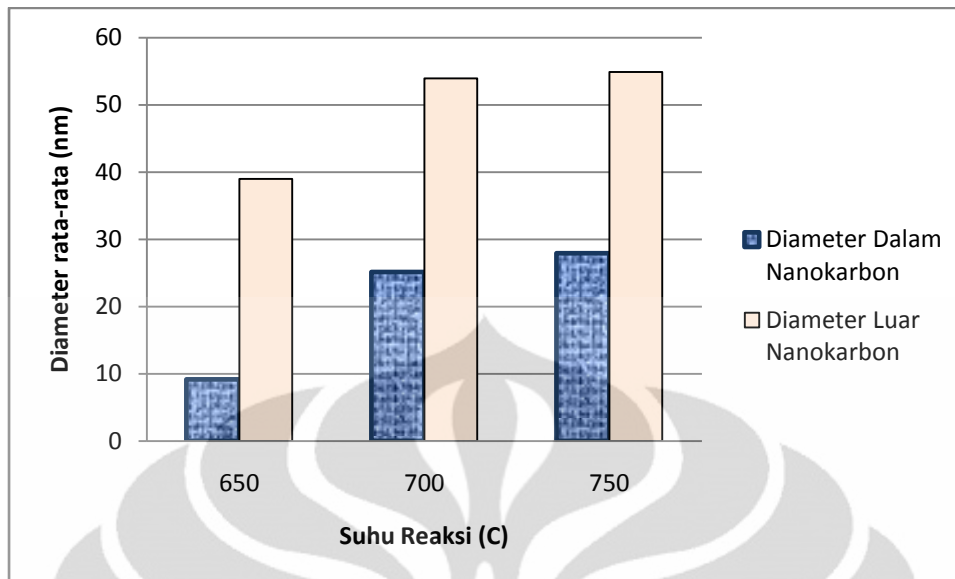
Gambar 4. 23 TEM produk nano karbon pada waktu reaksi 3 menit dengan variasi suhu reaksi (a)500⁰C, (b)550⁰C, (c)600⁰C, (d)650⁰C, (e)700⁰C dan (f)750⁰C

Menurut Chen (2004), bentuk nano karbon bervariasi. Salah satu parameter yang mempengaruhi adalah temperatur reaksi. Hasil TEM pada temperatur 1013K menghasilkan pertumbuhan CNF yang diikuti dengan adanya Carbon Nanoball (Gambar 4.24) yaitu adanya partikel katalis yang telah tertutupi karbon.



Gambar 4. 24 TEM produk CNF diikuti dengan *Carbon Nanoball* pada 1013K (Chen,2004)

Berdasarkan morfologinya (Gambar 4.23), produk nanokarbon yang terbentuk berdasarkan variasi temperatur dapat dibedakan dua area atau fase. Pada suhu 500°C hingga 600°C yaitu fase terbentuknya CNF (*Carbon Nano Fiber*) yang diikuti dengan adanya *carbon nanoball* sesuai dengan literatur yang ada sedangkan pada suhu 650°C hingga 750°C adalah fase terbentuknya CNT (*Carbon Nano Tube*). Para peneliti banyak yang menyimpulkan bahwa suhu reaksi berpengaruh terhadap diameter produk. Semakin tinggi suhu reaksi maka semakin besar pula diameter produk (Lee,2002; Kumar and Ando,2005) . Hal ini sesuai dengan hasil penelitian ini, terlihat pada Gambar 4.25.



Gambar 4. 25 Profil diameter CNT terhadap suhu reaksi.

Terlihat peningkatan diameter produk yang cukup tinggi pada suhu reaksi 650⁰C terhadap 700⁰C namun peningkatan diameter pada suhu reaksi 700⁰C terhadap 750⁰C tidak terlalu besar. Besarnya diameter CNT dengan kondisi operasi variasi temperatur pada waktu reaksi 3 menit dapat dilihat pada tabel di bawah ini.

Tabel 4. 7 Diameter CNT pada waktu reaksi 3 menit

T(⁰ C)	Diameter dalam rata-rata (nm)	Diameter luar rata-rata (nm)
650	9,15	39,01
700	25,12	53,96
750	27,91	54,89

Berdasarkan beberapa parameter di atas terutama pada morfologinya, temperatur terbaik pada penelitian ini berada pada temperatur 700⁰C untuk menghasilkan CNT dengan kualitas terbaik berdasarkan variasi suhu reaksi yang dilakukan.

Untuk melihat pengaruh suhu reaksi terhadap luas permukaan, pada penelitian ini dilakukan karakterisasi menggunakan BET. Tabel 4.9 memperlihatkan *surface area* katalis dan produk nanokarbon pada variasi suhu reaksi dengan waktu reaksi 3 menit.

Tabel 4. 8 Hasil BET pada variasi temperatur reaksi dengan waktu reaksi 3 menit

No.	Suhu Reaksi (⁰ C)	SA (m ² /g)
1	Katalis	32,32
2	500	43,98
3	550	54,65
4	600	67,76
5	650	52,62
6	700	48,72
7	750	33,46

Luas permukaan terbesar sebesar 67,67 m²/g berada pada suhu reaksi 600⁰C. Terlihat pada Tabel 4.8, peningkatan luas permukaan pada suhu reaksi 500⁰C-600⁰C yakni area terbentuknya CNF yang diikuti oleh *carbon nanoball* kemudian penurunan luas permukaan pada area terbentuknya CNT (Gambar4.23). Yu (2005), menghasilkan CNT dengan luas permukaan berada pada rentang 122,8-286,5 m²/g. Sedangkan Kim (1995), menghasilkan CNF dengan luas permukaan diatas 300 m²/g. Sesuai literatur dapat dikatakan bahwa luas permukaan CNF lebih besar daripada luas permukaan CNT.

BAB 5

KESIMPULAN

5.1 KESIMPULAN

Dari penelitian ini, dapat disimpulkan beberapa hal berikut :

1. Katalis Ni/Cu/Al dengan metode kopresipitasi digunakan untuk dekomposisi katalitik metana. Kualitas produk yang dihasilkan berupa nanokarbon dipengaruhi oleh pemilihan kondisi operasi yang optimal terutama terhadap morfologi nanokarbon.
2. Semakin besar laju reaksi, waktu reaksi dan suhu reaksi maka diameter nanokarbon semakin meningkat.
3. Kondisi operasi yang paling berpengaruh adalah temperatur reaksi. Karakterisasi SEM dan TEM memperlihatkan pertumbuhan nanokarbon ke dalam dua fase yaitu suhu reaksi 500⁰C-600⁰C terbentuk CNF diikuti dengan adanya *carbon nanoball* dan pada suhu reaksi 650⁰C-750⁰C terbentuk CNT dengan jenis MWNT. Luas permukaan CNF lebih besar dibandingkan CNT.
4. MWNT dihasilkan pada kondisi optimal yakni laju alir metana sebesar 120 mL/mnt, waktu reaksi 20 menit dan suhu reaksi 700⁰C dengan diameter yang cukup seragam sebesar 54-59 nm dan persebaran karbon merata.
5. Katalis selama 10 jam direaksikan dengan metana masih menghasilkan stabilitas katalis yang cukup baik dengan aktivitas katalis meningkat pada 5 menit pertama kemudian menurun secara drastis hingga aktivitas mulai relatif stabil pada rentang 1-10 jam.

5.2 SARAN

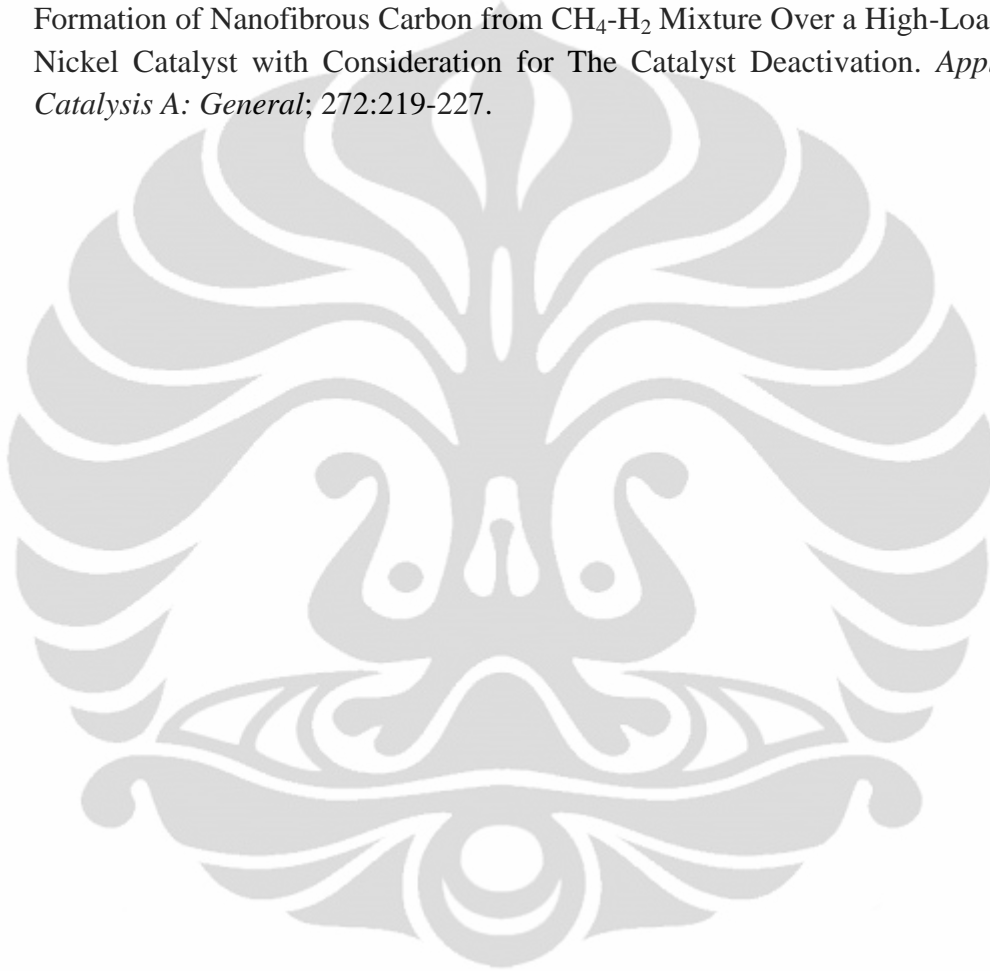
Untuk penelitian selanjutnya, peneliti menyarankan untuk melakukan teknik karakterisasi menggunakan Thermogravimetry Analysis (TGA) dan Raman Spektra. Serta karakterisasi morfologi produk dengan HR-TEM sehingga analisa lebih kualitatif dan kuantitatif.

DAFTAR PUSTAKA

- 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*; 39:1467-1475.
- Chen, Jiuling, et al. (2004). *Production of CO_x-free Hydrogen and Nanocarbon by Direct Decomposition of Undiluted Methane on Ni-Cu-Alumina Catalyst. Applied Catalysis A: General*; 269:179-186.
- Chinchen, G. C. et al. (1987). Mechanism of Methanol Synthesis from CO₂/CO/H₂ Mixture Over Copper/Zinc Oxide/Alumina Catalyst: *Use of ¹⁴C-Labelled Reactants. Applied Catalysis A: General*; 30:333-338.
- Chinthajjala, 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.
- Daenan. M, et al., (2003). Wondrous World of Carbon Nanotubes. *Eindhoven University of Technology*.
- Ermakova, M. A. et al. (1999). *New Nickel Catalyst for The Formation of Filamentous Carbon in The Reaction of Methane Decomposition. Journal of Catalysis*; 187:77-84.
- Ermakova, M. A. (2000). Effective Catalysts for Direct of Methane to Produce Hydrogen and Filamentous Carbon. *Applied Catalysis A: General*; 201:61-71.
- Ermakova, M. A. dan D. Yu. Ermakova. (2002). Ni/SiO₂ and Fe/SiO₂ Catalysts for Production of Hydrogen and Filamentous Carbon via Methane Decomposition. *Catalysis Today*; 77:225-23
- Fogler, H. Scott. (1999). Elements of Chemical Reactions Engineering Third Edition. *New Jersey: Prentice Hall Inc*.
- Huan Wang, Jiyun Feng, Xijun Hu, Ka Ming Ng. (2007). Synthesis of Aligned Carbon Nanotubes on Double-Sided Metallic Substrate by Chemical Vapor Deposition. *Journal of Physical Chemistry Catalyst*, 11, 12617-12624
- Kumar, M.; Ando, Y. (2005). Controlling the diameter distribution of carbon nanotubes grown from camphor on a zeolite support. *Carbon*, 43 (3), 533.
- Lee, Y. T.; Park, J. (2002). Temperature dependent growth of vertically aligned carbon nanotubes in the range 800-1100 °C. *J. Phys. Chem. B*, 106 (31), 7614.

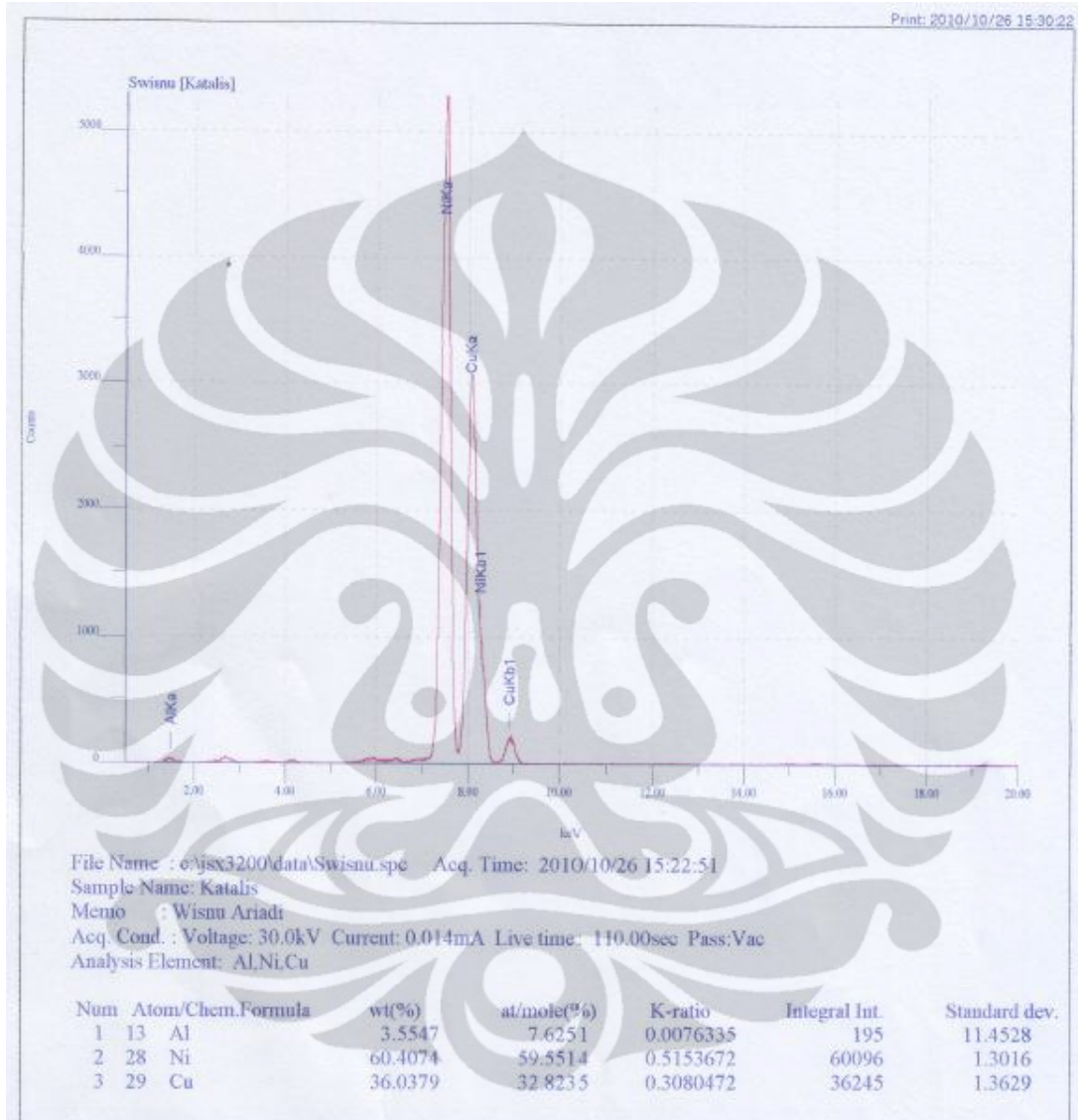
- Michio, Inagaki, Katsumi Kaneko, Takashi Nishizawa. (2004). Nanocarbons-Recent Research in Japan. *Carbon*, 42:1401-1417.
- Muradov, N. (2001). Catalysis of Methane Decomposition over Elemental Carbon. *Catalysis Communication* 2, 89 – 94
- M.-S. Kim, N.M. Rodriquez and R.T.K. Baker, Mat. (1995). *Res. Soc. Symp. Proc.* 368 99.
- Nasikin, M., Bambang Heru. (2010). Katalisis Heterogen. Depok : UI-Press.
- Nerushev, O. A.; Morjan, R. E.; Ostrovskii, D. I.; Sveningsson, M.; Jonsson, M.; Rohmund, F.; Campbell, E. E. B. (2002). The temperature dependence of Fe-catalysed growth of carbon nanotubes on silicon substrates. *Physica B*, 323 (1-4), 51.
- Piao, L. Y.; Li, Y. D.; Chen, J. L.; Chang, L.; Lin, J. Y. S. (2002). Methane decomposition to carbon nanotubes and hydrogen on an alumina supported nickel aerogel catalyst. *Catal. Today*, 74, 145.
- Purwanto W.W., M. Nasikin, E. Saputra, L. Song (2005). Decomposition of Methane to Produce NanoCarbon and Hydrogen with Ni-Cu-Al-Si as the Catalyst, *Prosiding Seminar Nasional Rekayasa Kimia dan Proses*, UNDIP Semarang
- Rao CNR, Satishkumar BC, Govindaraj A, Nath M. (2001). Nanotubes. *Chemphyschem* ;2:78-105.
- Resketenko, T.V. , et al. (2003). Carbon capacious Ni-Cu-Al₂O₃ catalyst for high temperature methane decomposition. *Applied Catalyst A: General*, 247, 51-63
- Shafa, Shantya. (2009). Aplikasi Pengadukan Ultrasonik dan Pemanasan Microwave untuk Memurnikan Karbon Nanotube yang Disintesis dengan Metode Dekomposisi Katalitik Metana. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.
- Shafa, Shantya. (2009). Aplikasi Pengadukan Ultrasonik dan Pemanasan Microwave untuk Memurnikan Karbon Nanotube yang Disintesis dengan Metode Dekomposisi Katalitik Metana. Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

- Snoeck, J.W et al. (1997). Kinetic Study of the Carbon Filament Formation by Methane Cracking on a Nickel Catalyst. *Journal of Catalysis* 159: 250:262
- Weizhong, Qian, et al. (2004). Production of Hydrogen and Carbon Nanotubes from Methane Decomposition in a Two-Stage Fluidized Bed Reactor. *Applied Catalysis*, 260, 223-228.
- Zavarukhin, Sergei G. dan Gennedy G. Kushinov. (2004). The Kinetic Model of Formation of Nanofibrous Carbon from CH₄-H₂ Mixture Over a High-Loaded Nickel Catalyst with Consideration for The Catalyst Deactivation. *Applied Catalysis A: General*; 272:219-227.



LAMPIRAN A. KARAKTERISASI KATALIS

A.1 Karakterisasi XRF



A.2 Karakterisasi AAS

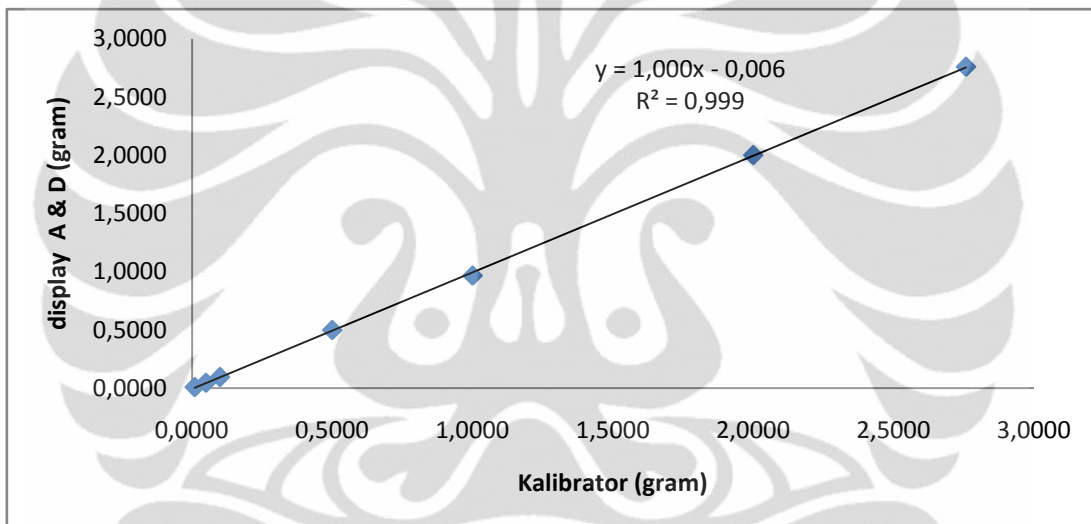
No	Kode Contoh	Jenis Analisis	Hasil Analisis	Satuan	Metode Analisis
1.	Katalis	Cu	13,29	%	AAS
		Ni	30,62	%	AAS
		Al	13,00	%	AAS

A.3 Karakterisasi BET

Date: 12/03/2010					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	NI CUal				
Description	wilda				
Comments					
Sample Weight	0.5357 g				
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150.0 °C	Operator	.jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molecul	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	43.4 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3	End of Run	11/30/2010 16:4
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2	File Name	AS965595.RAW
Station #	5	Bath Temp.	77.40	PC SW Version	Pre-1.20
AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY					
SURFACE AREA DATA					
Multipoint BET.....		3.232E+01	m ² /g		
Langmuir Surface Area.....		5.113E+01	m ² /g		
t-Method External Surface Area.....		3.053E+01	m ² /g		
t-Method Micro Pore Surface Area.....		1.789E+00	m ² /g		
DR Method Micro Pore Area.....		4.311E+01	m ² /g		
PORE VOLUME DATA					
t-Method Micro Pore Volume.....		7.236E-04	cc/g		
DR Method Micro Pore Volume.....		1.532E-02	cc/g		
HK Method Cumulative Pore Volume.....		1.302E-02	cc/g		
SF Method Cumulative Pore Volume.....		1.332E-02	cc/g		
PORE SIZE DATA					
DR Method Micro Pore Width		1.037E+02	Å		
DA Method Pore Diameter (Mode).....		1.780E+01	Å		
HK Method Pore Width (Mode).....		1.438E+01	Å		
SF Method Pore Diameter (Mode).....		2.685E+01	Å		
DATA REDUCTION PARAMETERS					
Thermal Transpiration : OFF					
Last Po Acquired 766.29 mm Hg					
Additional Initialization Information Not Recorded.					
BJH/DH Moving Average Size : 1					
Interaction Constant (K) 2.9600 nm ³ x kJ/mol					

LAMPIRAN B. KALIBRASI MICROBALANCE

	kalibrator (g)	A&D (g)
Berat wadah kosong =	2,7582	2,7580
Berat katalis	0,0100	0,0100
	0,0500	0,0468
	0,1000	0,0963
	0,5000	0,4996
	1,0000	0,9662
	2,0000	2,0002



LAMPIRAN C. PERHITUNGAN DATA MICROBALANCE UNTUK MENENTUKAN STABILITAS DAN AKTIVITAS KATALIS

Menit ke-	Perubahan Massa Selama Dekomposisi Metana (g)	Pertumbuhan karbon (g)	Perubahan massa spesifik (g C/g Ni)	Laju pembentukan karbon (g C/g Ni.min)	Aktivitas
0,00	-0,0682	0,0000	0,0000	0,0000	0
2,47	0,0084	0,0766	1,7338	0,7029	0
3,03	0,0195	0,0111	4,0249	1,3269	0
3,65	0,0097	-0,0098	2,0021	0,5485	0
3,65	0,0095	-0,0002	1,9608	0,5372	0
4,75	0,0422	0,0327	8,7103	1,8337	1
4,75	0,0422	0,0000	8,7103	1,8337	1
8,07	0,0525	0,0103	10,8362	1,3433	0,732565
9,97	0,0548	0,0023	11,3109	1,1349	0,618888
9,98	0,0546	-0,0002	11,2697	1,1288	0,615599
16,17	0,0934	0,0388	19,2782	1,1925	0,650291
20,02	0,1091	0,0157	22,5187	1,1250	0,613499
23,38	0,1112	-0,0002	22,9521	0,9816	0,535278
26,05	0,1373	0,0261	28,3393	1,0879	0,593258
27,73	0,1246	-0,0127	25,7180	0,9273	0,505705
28,57	0,1405	0,0162	28,9998	1,0152	0,553602
29,18	0,1358	-0,0047	28,0297	0,9605	0,523777
35,73	0,1579	0,0007	32,5912	0,9121	0,497382
36,10	0,1581	0,0000	32,6325	0,9039	0,492953
37,08	0,1718	0,0137	35,4602	0,9562	0,521465
37,78	0,1652	0,0000	34,0980	0,9025	0,492143
40,73	0,1814	0,0161	37,4417	0,9192	0,501266
41,15	0,1708	-0,0106	35,2538	0,8567	0,467196
41,57	0,1867	0,0002	38,5357	0,9271	0,505569
42,30	0,1796	-0,0071	37,0702	0,8764	0,477911
44,35	0,1905	0,0048	39,3200	0,8866	0,483484
46,77	0,2057	0,0152	42,4573	0,9079	0,495084
48,70	0,1967	-0,0092	40,5997	0,8337	0,454628
49,50	0,2311	0,0344	47,7000	0,9636	0,525504
56,72	0,2311	0,0000	47,7000	0,8410	0,458638
57,93	0,2381	0,0000	49,1448	0,8483	0,462607
58,20	0,2366	0,0000	48,8352	0,8391	0,457586
59,87	0,2259	-0,0107	46,6267	0,7788	0,424729
63,80	0,2584	-0,0001	53,3348	0,8360	0,455883
64,37	0,2526	-0,0058	52,1377	0,8100	0,441727

Menit ke-	Perubahan Massa Terkoreksi Selama Dekomposisi Metana (g)	Pertumbuhan karbon (g)	Perubahan massa spesifik (g C/g Ni)	Laju pembentukan karbon (g C/g Ni.min)	Aktivitas
120,73	0,4188	0,0135	86,4421	0,7160	0,390446
178,70	0,5878	0,0386	121,3244	0,6789	0,370242
242,37	0,6612	0,0083	136,4744	0,5631	0,307073
291,53	0,6678	0,0001	137,8367	0,4728	0,257834
337,15	0,6657	-0,0002	137,4033	0,4075	0,222247
386,77	0,7751	0,1094	159,9839	0,4136	0,225574
432,45	0,7504	-0,0001	154,8857	0,3582	0,195316
480,80	0,8339	0,0368	172,1205	0,3580	0,195223
541,02	0,8334	-0,0054	172,0173	0,3180	0,17339
574,27	0,8465	0,0027	174,7211	0,3043	0,165918
605,95	0,8465	-0,0003	174,7211	0,2883	0,157243
636,72	0,8518	-0,0003	175,8151	0,2761	0,150582

Persamaan yang digunakan :

$$r'_c = \frac{\text{rate of carbon formation } \left(\frac{g_c}{\text{min}}\right)}{\text{mass of Ni } (g_{Ni})}$$

dan

$$a(t) = \frac{(r'_c)_t}{(r'_c)_{max}}$$

Keterangan : r'_c = laju pembentukan karbon
 $a(t)$ = aktivitas katalis. (Rahman, 2006).

LAMPIRAN D. PERHITUNGAN DIAMETER NANOKARBON

D.1 Perhitungan hasil XRD produk CNT pada temperatur reaksi 700⁰C waktu reaksi 60 menit

Θ	$\cos \theta$	FWHM	β (rad)	D (nm)
13,1256	0,9738	1,1351	0,019811	71,07
11,86	0,9786	1,1028	0,019247	72,79
21,9333	0,9276	1,2933	0,022572	65,48
rata-rata				69,78

D.2 Diameter nanokarbon pada variasi laju alir metana

Laju (mL/mnt)	Diameter luar rata-rata (nm)
40	51,77
80	63,03
120	69,78

D.3 Diameter nanokarbon pada variasi waktu reaksi

t(mnt)	D dalam rata-rata (nm)	D luar rata-rata (nm)
1	14,89	52,10
3	28,84	53,96
5	30,24	54,27
10	32,56	54,89
20	35,09	55,56
40	37,57	57,79
60	50,44	69,78

D.4 Diameter nanokarbon pada variasi temperatur reaksi

T(C)	D dalam rata-rata (nm)	D luar rata-rata (nm)
650	9,150758	39,01112
700	25,1208	53,9632
750	27,912	54,8936

**LAMPIRAN E. HASIL PERHITUNGAN MENGGUNAKAN GC PADA
VARIASI TEMPERATUR REAKSI**

Temperatur (°C)	t Pengambilan Data, menit ke-	F Umpan Aktual, mol/menit	F Produk CH ₄ , mol/menit	Peak Area				Konversi, X _{CH₄}
				CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	
500	0	0,000000	0,000000	823530	145049	245		0%
	5	0,003166	0,003166	831124	129116	223		8%
	10	0,002997	0,002997	835989	119143	239		12%
	15	0,003033	0,003033	835746	114945	252		12%
	20	0,003008	0,003008	839440	111411	248		12%
	25	0,003021	0,003021	840487	108478	226		11%
	30	0,002998	0,002998	840419	105285	225		11%
	35	0,003012	0,003012	848751	103431	254		11%
	40	0,003038	0,003038	842066	99780	223		11%
	45	0,002992	0,002992	841800	100111	255		11%
	50	0,003015	0,003015	843507	96595	202		10%
	55	0,002969	0,002969	843826	93994	208		10%
	60	0,003005	0,003005	844733	90413	258		10%
	65	0,003012	0,003012	844692	90967	263		10%
Rata-rata								11%

Temperatur (°C)	(t) menit ke-	F Umpan Aktual, mol/menit	F Produk CH ₄ , mol/menit	Peak Area				Konversi, X _{CH₄}
				CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	
550	0	0,003749	0,000000	757404	238658	379		0%
	5	0,003597	0,002866	799295	246240	134		20%
	10	0,003552	0,002785	807679	235450			22%
	15	0,003601	0,002833	811975	219939			21%
	20	0,003576	0,002826	805156	213548	129		21%
	25	0,003558	0,002853	817264	202057			20%
	30	0,003451	0,002785	813950	194302	147		19%
	35	0,003494	0,002835	813348	188818	164		19%
	40	0,003545	0,002896	819996	183528	134		18%
	45	0,003494	0,002869	824638	179253	164		18%
	50	0,003545	0,002918	816228	175185	157		18%
	55	0,003541	0,002933	819851	170015	147		17%
	60	0,003552	0,002959	824190	164947	157		17%
	65	0,003524	0,002949	828018	161307	150		16%
Rata-rata								19%
600	0	0,003677	0,000000	737310	443168	2197		0%
	5	0,003681	0,002460	780330	386050	158		33%
	10	0,003531	0,002543	789820	353220			28%
	15	0,003572	0,002529	796630	328478			29%
	20	0,003545	0,002536	798067	317328			28%
	25	0,003545	0,002605	807216	291333			27%
	30	0,003524	0,002617	809378	280658			26%
	35	0,003390	0,002544	812552	269974			25%
	40	0,003470	0,002672	819002	244516			23%
	45	0,003460	0,002692	822098	234761			22%
	50	0,003451	0,002699	822046	229038			22%
	55	0,003402	0,002678	822492	222424			21%
	60	0,003428	0,002682	819739	228003			22%
	65	0,003438	0,002747	823729	207255			20%
Rata-rata								25%

Temperatur (°C)	(t) menit ke-	F Umpan Aktual, mol/menit	F Produk CH ₄ , mol/menit	Peak Area				Konversi, X _{CH₄}
				CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	
650	0	0,003714	0,000000	649107	814687	455		0%
	5	0,003514	0,002009	715804	607418			43%
	10	0,003538	0,002030	734585	536773			43%
	15	0,003428	0,002097	756667	480202			39%
	20	0,003304	0,002087	758940	442435			37%
	25	0,003313	0,002152	765599	412899			35%
	30	0,003307	0,002180	771370	398372			34%
	35	0,003277	0,002193	774099	382364			33%
	40	0,003213	0,002167	777414	375256			33%
	45	0,003399	0,002335	780663	355943			31%
	50	0,003380	0,002328	778425	351617			31%
	55	0,003377	0,002351	787499	343498			30%
	60	0,003418	0,002393	786191	336819			30%
	65	0,003409	0,002408	788836	327648			29%
Rata-rata								34%
700	0	0,003764	0,000000	600195	986291			0%
	5	0,003590	0,001643	654730	845711			54%
	10	0,003405	0,001668	673855	776267			51%
	15	0,003441	0,001680	689098	721842			51%
	20	0,003428	0,001771	706231	660509			48%
	25	0,003431	0,001843	716473	617240			46%
	30	0,003383	0,001849	723483	600185			45%
	35	0,003304	0,001845	731046	577901			44%
	40	0,003245	0,001833	733332	565019			44%
	45	0,003340	0,001931	739737	539796			42%
	50	0,003283	0,001926	756120	532374			41%
	55	0,003280	0,001896	737992	538529			42%
	60	0,003331	0,001931	739587	536066			42%
	65	0,003310	0,001934	741115	527004			42%
Rata-rata								46%

Temperatur (°C)	t Pengambilan Data, menit ke-	F Umpan Aktual, mol/menit	F Produk CH ₄ , mol/menit	Peak Area				Konversi, X _{CH₄}
				CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	
750	0	0,003832	0,000000	506094	1318194			0%
	5	0,003753	0,001394	593797	1038184			63%
	10	0,003688	0,001493	621171	940636			60%
	15	0,003714	0,001588	644255	862636			57%
	20	0,003555	0,001631	666805	786370			54%
	25	0,003562	0,001674	672469	758744			53%
	30	0,003441	0,001648	678305	738127			52%
	35	0,003454	0,001683	682325	717956			51%
	40	0,003447	0,001719	689019	693158			50%
	45	0,003454	0,001752	692984	672884			49%
	50	0,003500	0,001814	700829	651244			48%
	55	0,003371	0,001796	709627	622339			47%
	60	0,003464	0,001854	709682	616288			46%
	65	0,003504	0,001930	715116	583133			45%
Rata-rata								52%

LAMPIRAN F. HASIL KARAKTERISASI NANOKARBON MENGUNAKAN BET

F.1 BET nanokarbon pada temperatur reaksi 500⁰C

Date: 06/13/2011					
Quantachrome Corporation Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23					
Sample ID	CNT (Ni/Cu/Al) 500 C				
Description	Wilda				
Comments					
Sample Weight	0.3903 g				
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150 °C	Operator	jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molec	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	46.1 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3	End of Run	05/26/2011 11:18
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2	File Name	AS977731.RAW
Station #	3	Bath Temp.	77.40		
AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY					
SURFACE AREA DATA					
Multipoint BET.....	4.398E+01 m ² /g				
Langmuir Surface Area.....	6.935E+01 m ² /g				
t-Method External Surface Area.....	4.085E+01 m ² /g				
t-Method Micro Pore Surface Area.....	3.128E+00 m ² /g				
DR Method Micro Pore Area.....	5.952E+01 m ² /g				
PORE VOLUME DATA					
t-Method Micro Pore Volume.....	1.420E-03 cc/g				
DR Method Micro Pore Volume.....	2.115E-02 cc/g				
HK Method Cumulative Pore Volume.....	1.796E-02 cc/g				
SF Method Cumulative Pore Volume.....	1.836E-02 cc/g				
PORE SIZE DATA					
DR Method Micro Pore Width	1.045E+02 Å				
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.780E+01 Å				
HK Method Pore Width (Mode).....	1.438E+01 Å				
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.704E+01 Å				
DATA REDUCTION PARAMETERS					
Thermal Transpiration : OFF Last Po Acquired 770.69 mm Hg Additional Initialization Information Not Recorded.					
BJH/DH Moving Average Size : 1					
Interaction Constant (K) 2.9600 nm ³ x kJ/mol					

F.2 BET nanokarbon pada temperatur reaksi 600°C

Date: 06/13/2011

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

Sample ID	CNT (Ni/Cu/Al) 600 C		
Description	Wilda		
Comments			
Sample Weight	0.3700 g		
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150 °C
		Operator	jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molec	Outgas Time	24.0 hrs
		Analysis Time	46.8 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3
		End of Run	06/01/2011 10:08
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2
		File Name	AS977738.RAW
Station #	3	Bath Temp.	77.40

AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY

SURFACE AREA DATA

Multipoint BET.....	6.776E+01 m ² /g
Langmuir Surface Area.....	1.063E+02 m ² /g
t-Method External Surface Area.....	6.203E+01 m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	5.732E+00 m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	9.240E+01 m ² /g

PORE VOLUME DATA

t-Method Micro Pore Volume.....	2.696E-03 cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	3.284E-02 cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	2.791E-02 cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	2.852E-02 cc/g

PORE SIZE DATA

DR Method Micro Pore Width	1.048E+02 Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.780E+01 Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.412E+01 Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.657E+01 Å

DATA REDUCTION PARAMETERS

Thermal Transpiration : OFF
Last Po Acquired 770.76 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.

BJH/DH Moving Average Size : 1
Interaction Constant (K) 2.9600 nm³ x kJ/mol

F.3 BET nanokarbon pada temperatur reaksi 650°C

Date: 06/13/2011	
Quantachrome Corporation Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23	
Sample ID	CNT (Ni/Cu/Al) 650 C
Description	Wilda
Comments	
Sample Weight	0.4300 g
Adsorbate	NITROGEN
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molec
NonIdeality	6.580E-05
Molecular Wt	28.0134 g/mol
Station #	3
Outgas Temp	150 °C
Outgas Time	24.0 hrs
P/Po Toler	3
Equil Time	2
Bath Temp.	77.40
Operator	jajat
Analysis Time	52.8 min
End of Run	06/09/2011 13:00
File Name	AS977744.RAW
AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY	
SURFACE AREA DATA	
Multipoint BET.....	5.262E+01 m ² /g
Langmuir Surface Area.....	8.237E+01 m ² /g
t-Method External Surface Area.....	4.904E+01 m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	3.579E+00 m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	7.088E+01 m ² /g
PORE VOLUME DATA	
t-Method Micro Pore Volume.....	1.607E-03 cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	2.519E-02 cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	2.147E-02 cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	2.195E-02 cc/g
PORE SIZE DATA	
DR Method Micro Pore Width	1.035E+02 Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.780E+01 Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.402E+01 Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.630E+01 Å
DATA REDUCTION PARAMETERS	
Thermal Transpiration : OFF	
Last Po Acquired 777.23 mm Hg	
Additional Initialization Information Not Recorded.	
BJH/DH Moving Average Size : 1	
Interaction Constant (K) 2.9600 nm ³ x kJ/mol	

F.4 BET nanokarbon pada temperatur reaksi 700°C

Date: 06/13/2011

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

Sample ID	CNT (Ni/Cu/Al) 700 C				
Description	Wilda				
Comments					
Sample Weight	0.4015 g				
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150 °C	Operator	jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molec	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	42.0 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3	End of Run	05/25/2011 11:49
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2	File Name	AS977729.RAW
Station #	4	Bath Temp.	77.40		

AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY

SURFACE AREA DATA

Multipoint BET.....	4.872E+01 m ² /g
Single Point BET.....	4.769E+01 m ² /g
Langmuir Surface Area.....	7.657E+01 m ² /g
t-Method External Surface Area.....	4.683E+01 m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	1.897E+00 m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	6.488E+01 m ² /g

PORE VOLUME DATA

t-Method Micro Pore Volume.....	6.798E-04 cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	2.306E-02 cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	1.959E-02 cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	2.005E-02 cc/g

PORE SIZE DATA

DR Method Micro Pore Width	1.044E+02 Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.780E+01 Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.408E+01 Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.639E+01 Å

DATA REDUCTION PARAMETERS

Thermal Transpiration : OFF
Last Po Acquired 768.95 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.

BJH/DH Moving Average Size : 1
Interaction Constant (K) 2.9600 nm³ x kJ/mol

F.5 BET nanokarbon pada temperatur reaksi 750°C

Date: 06/14/2011

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

Sample ID	CNT (Ni/Cu/Al) 750 C				
Description	Wilda				
Comments					
Sample Weight	0.2246 g				
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150 °C	Operator	jajat
Cross-Sec Area	16.2 Å ² /molec	Outgas Time	24.0 hrs	Analysis Time	51.6 min
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3	End of Run	06/14/2011 11:44
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2	File Name	AS977750.RAW
Station #	3	Bath Temp.	77.40		

AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY

SURFACE AREA DATA

Multipoint BET.....	3.346E+01 m ² /g
Langmuir Surface Area.....	5.394E+01 m ² /g
t-Method External Surface Area.....	3.346E+01 m ² /g
t-Method Micro Pore Surface Area.....	0.000E+00 m ² /g
DR Method Micro Pore Area.....	4.522E+01 m ² /g

PORE VOLUME DATA

t-Method Micro Pore Volume.....	0.000E+00 cc/g
DR Method Micro Pore Volume.....	1.607E-02 cc/g
HK Method Cumulative Pore Volume.....	1.330E-02 cc/g
SF Method Cumulative Pore Volume.....	1.363E-02 cc/g

PORE SIZE DATA

DR Method Micro Pore Width	1.127E+02 Å
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.800E+01 Å
HK Method Pore Width (Mode).....	1.448E+01 Å
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.713E+01 Å

DATA REDUCTION PARAMETERS

Thermal Transpiration : OFF
Last Po Acquired 760.62 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.

BJH/DH Moving Average Size : 1
Interaction Constant (K) 2.9600 nm³ x kJ/mol

