



UNIVERSITAS INDONESIA

**UJI KINERJA REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR PELAT
SKALA *BENCH* UNTUK PRODUKSI *CARBON NANOTUBE*
DAN HIDROGEN MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI
KATALITIK METANA**

SKRIPSI

**RAMANIYA ANINDITA WANDAWA
0806456764**

**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JULI 2012**



UNIVERSITAS INDONESIA

**UJI KINERJA REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR PELAT
SKALA *BENCH* UNTUK PRODUKSI *CARBON NANOTUBE*
DAN HIDROGEN MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI
KATALITIK METANA**

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana

**RAMANIYA ANINDITA WANDAWA
0806456764**

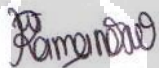
**FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JULI 2012**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

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

Nama : Ramaniya Anindita Wandawa

NPM : 0806456764

Tanda tangan : 

Tanggal : 5 Juli 2012



HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh

Nama : Ramaniya Anindita Wandawa
NPM : 0806456764
Program Studi : Teknik Kimia
Judul Skripsi : Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Skala
Bench untuk Produksi *Carbon Nanotube* dan
Hidrogen melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik
Metana

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

DEWAN PENGUJI

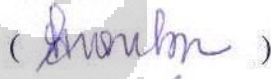
Pembimbing I : Dr. Ir. Praswasti PDK Wulan, M.T.

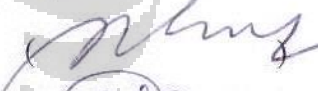
Pembimbing II : Dr.rer.nat. Ir. Yuswan Muharam, M.T.

Penguji : Dr. Ir. Asep Handaya Saputra, M.Eng.

Penguji : Dr. Ing. Donni Adinata, S.T., M.Eng.Sc.

Penguji : Dr. Ing. Ir. Misri Gozan, M.Tech.

()

()

()

()

()

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 5 Juli 2012

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur kepada Allah S.W.T atas berkat dan rahmat-Nya skripsi ini dapat diselesaikan tepat pada waktunya. Skripsi ini disusun untuk memenuhi sebagian persyaratan akademis dalam meraih gelar Sarjana Teknik di Program Studi Teknik Kimia pada Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Pada penulisan skripsi ini, penulis mendapatkan banyak bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak. Pada kesempatan ini, penulis mengucapkan terima kasih kepada:

1. Dr. Ir. Praswasti PDK Wulan, MT dan Dr. rer. nat Yuswan Muharam, MT selaku pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran untuk membimbing saya dalam penyusunan skripsi;
2. Bapak, Ibu, adik-adik dan seluruh keluarga atas segala perhatian dan doanya;
3. Kanya, Haryo, Adet, Yeni, Najma, Mia sebagai rekan satu bimbingan atas bantuan dalam bertukar pikiran saat penelitian;
4. Kang Jajat dan Mang Ijal dalam memberikan banyak sekali bantuan agar penelitian berjalan lancar;
5. Lolyta, Yosmarina, Santoso, Vina, Tania dan teman-teman laboratorium RPKA yang saling membantu dan menghibur di kala penelitian;
6. Hastomo, sahabat yang selalu sabar menemani, memberi semangat, dan mendengar keluhan saya;
7. Andani, Iftitah, dan Satrio, teman baik yang menemani saya saat ujian skripsi;
8. Teman-teman Teknik Kimia UI 2008 atas masukan dan dukungannya

Penulis menyadari bahwa penulisan skripsi ini masih belum sempurna. Untuk ini, saran dan kritik yang membangun sangat diharapkan penulis untuk memperbaiki penulisan di masa mendatang. Semoga skripsi ini membawa manfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Depok, Juli 2012

Penulis

HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

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

Nama : Ramaniya Anindita Wandawa

NPM : 0806456764

Program Studi : Teknik Kimia

Departemen : Teknik Kimia

Fakultas : Teknik

Jenis Karya : Skripsi

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

UJI KINERJA REAKTOR KATALIS TERSTRUKTUR PELAT SKALA
BENCH UNTUK PRODUKSI *CARBON NANOTUBE* DAN HIDROGEN
MELALUI REAKSI DEKOMPOSISI KATALITIK METANA

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

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok

Pada tanggal : 5 Juli 2012

Yang menyatakan,



(Ramaniya Anindita Wandawa)

ABSTRAK

Nama : Ramaniya Anindita Wandawa

Program Studi : Teknik Kimia

Judul : Uji Kinerja Reaktor Katalis Terstruktur Pelat Skala *Bench* untuk Produksi *Carbon Nanotube* dan Hidrogen melalui Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Penelitian dilakukan untuk melakukan uji kinerja reaktor katalis terstruktur pelat untuk produksi *carbon nanotube* dan hidrogen melalui reaksi dekomposisi katalitik metana. Katalis yang digunakan adalah katalis Ni-Cu-Al dengan perbandingan molar 2:1:1. Reaksi dekomposisi katalitik metana dilakukan pada suhu 700°C selama 5 jam, dengan variasi *space time* 0,0006; 0,0032; 0,006 gr min/mL. Hasil uji kinerja tertinggi didapatkan pada *space time* 0,006 gr min/mL dengan konversi metana tertinggi 83,01% , kemurnian hidrogen tertinggi 70,23% , dan *yield* karbon 2,5 gr/gr katalis. *Carbon nanotube* yang dihasilkan memiliki diameter dalam 7,5-15 nm dan berbentuk Y-junction.

Kata kunci: reaktor katalis terstruktur, dekomposisi katalitik metana, *carbon nanotube*, hidrogen

ABSTRACT

Name : Ramaniya Anindita Wandawa

Study Program: Chemical Engineering

Title : Performance Test of Bench-Scale Plate Structured Catalyst Reactor to Produce *Carbon Nanotube* and Hydrogen via Catalytic Decomposition of Methane

The purpose of this research is to test the performance of plate structured catalyst to produce *carbon nanotube* and hydrogen via catalytic decomposition of methane. In this research, catalyst of Ni-Cu-Al with the molar ratio by 2:1:1 was used. The decomposition reaction took place at 700°C temperature for 5 hours, using 0,0006; 0,0032; and 0,006 gr min/mL *space time* variations. The maximum performance space-time was 0,006 gr min/mL with 83,01% for the highest number of methane conversion, 70,23% for the highest number of hydrogen purity, and 2,5 gr C/ gr catalyst carbon *yield*. The *carbon nanotubes* produced from the research were Y-junction-shaped and have 7,5-15 nm inner diameter.

Keywords: structured catalyst reactor, catalytic decomposition of methane, *carbon nanotube*, hydrogen

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
KATA PENGANTAR	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS	v
ABSTRAK.....	vi
ABSTRACT.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xiii
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	3
1.3 Tujuan Penelitian	3
1.4 Batasan Masalah.....	3
1.5 Sistematika Penulisan	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	5
2.1 Metode Dekomposisi Katalitik Metana	5
2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana	6
2.2.1 Nano Karbon.....	6
2.2.2 Hidrogen	11
2.3 Katalis Pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana.....	12
2.4 Metode Preparasi Katalis Dengan Sol Gel.....	15
2.5 Teknik Pelapisan Katalis Dip-Coating.....	16
2.6 Reaktor Untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana	16
2.6.1 <i>Fixed Bed Reactor</i>	16
2.6.2 <i>Spouted Bed Reactor</i>	17
2.6.4 Reaktor CVD	21
2.6.5 Reaktor Katalis Terstruktur	23

2.7 Space-Time	24
BAB III METODE PENELITIAN.....	25
3.1 Diagram Alir Penelitian	25
3.2 Alat Dan Bahan	26
3.3 Prosedur Penelitian.....	27
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	32
4.1 Hasil Perancangan Reaktor Katalis Terstruktur	32
4.2 Uji Panjang Efektif Reaktor	34
4.3 Preparasi Dan Karakterisasi Katalis.....	35
4.4 Pelapisan Katalis Pada Pelat Sejajar	37
4.5 Uji Kinerja Reaktor Untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana	39
4.5.1 Konversi Metana.....	40
4.5.2 Kemurnian Hidrogen	42
4.5.3 Yield Karbon.....	43
4.6 Profil Konsentrasi untuk Space-Time 0,006 gr min/mL.....	44
4.7 Deposit Karbon untuk Space-Time 0,006 gr min/mL.....	47
4.8 Hasil Kualitas Carbon Nanotube terhadap Waktu Reaksi	49
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	52
5.1 Kesimpulan	52
5.2 Saran	52

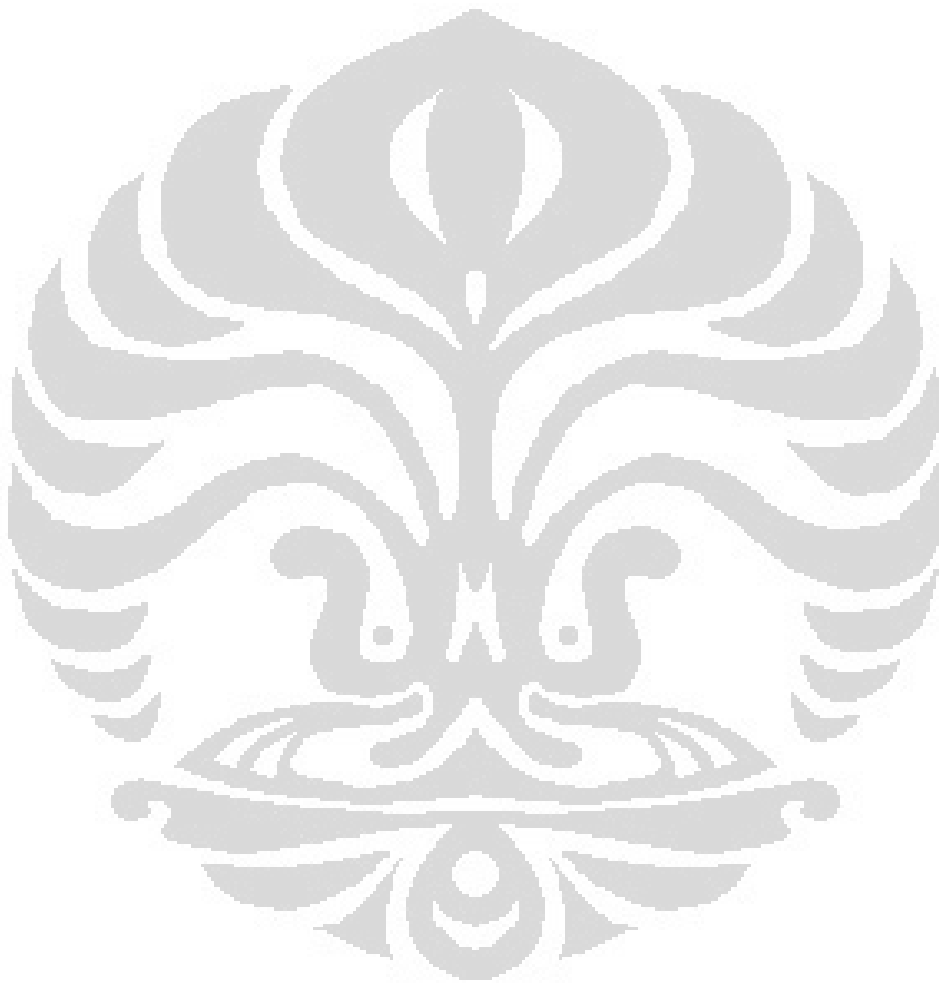
DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana [11]	6
Gambar 2.2 Bentuk alotropik karbon: (a) intan, (b) grafit [16]	8
Gambar 2.3 Bentuk alotropik karbon <i>fullerene</i> [16].....	8
Gambar 2.4 <i>Single Walled Carbon Nanotube</i> (a) <i>armchair</i> (b) <i>zigzag</i> (c) <i>chiral</i> [17]	8
Gambar 2.5 <i>Multi-Walled Carbon Nanotubes</i> [17].....	9
Gambar 2.6 Struktur <i>carbon cone</i> [18]	9
Gambar 2.7 Sistem <i>fixed-bed reactor</i> [26].....	17
Gambar 2.8 Spouted bed reactor: (1) dinding luar reaktor, (2) spouting zone, (3) katalis, (4) electric heater, (5) pre-heater, dan (6) filter [7]	18
Gambar 2.9 Sistem reaktor: (1) fluidized bed reactor, (2) electric heater, (3) <i>flow meter</i> , (4) suhu controller, (5) pre-heater, dan (6) filter[10]	19
Gambar 2.10 <i>Two-stage fluidized bed reactor</i> [9]	20
Gambar 2.11 Skema <i>Fluidized Bed Reactor</i> Semi Kontinu Skala Pilot [29]	21
Gambar 2.13 Reaktor CNT[30].....	22
Gambar 2.14 Reaktor katalis terstruktur sebelum reaksi (a) dan (b, c) setelah reaksi	23
Gambar 3.1 Diagram alir penelitian.....	25
Gambar 3.2 Rancangan reaktor.....	27
Gambar 3.3 Rancangan posisi pelat dalam reaktor.....	28
Gambar 3.4 Rangkaian peralatan penelitian	28
Gambar 4. 1 Ukuran <i>furnace</i> penelitian.....	32
Gambar 4.2 Reaktor dan <i>furnace</i> setelah fabrikasi	33
Gambar 4.3 Reaktor dan <i>furnace</i>	33
Gambar 4.4 Rangkaian peralatan penelitian	34
Gambar 4.5 Profil suhu dalam reaktor	35
Gambar 4.6(a) Pelarutan katalis Ni-Cu-Al dengan <i>hot plate</i> dan (b) katalis setelah dikalsinasi	36

Gambar 4.7 Hasil XRD katalis Ni-Cu-Al	37
Gambar 4.8 Kondisi pelat (a) sebelum kalsinasi dan (b) sesudah kalsinasi.....	39
Gambar 4.9 Profil konversi metana terhadap waktu untuk suhu reaksi 700°C.....	41
Gambar 4.10 Profil kemurnian hidrogen terhadap waktu untuk suhu reaksi 700°C	42
Gambar 4.11 Pelat sesudah reaksi dekomposisi katalitik metana pada 700°C untuk <i>space-time</i> (a) 0,0006 gr min/mL; (b) 0,0032 gr min/mL; (c) 0,006 gr min/mL	43
Gambar 4.12 Perbandingan <i>yield</i> karbon untuk suhu reaksi 700°C.....	44
Gambar 4.13 Profil %volume CH ₄ di dalam reaktor	45
Gambar 4.14 Profil konsentrasi CH ₄ di dalam reaktor	45
Gambar 4.15 Profil %volume H ₂ di dalam reaktor	46
Gambar 4.16 Profil konsentrasi H ₂ di dalam reaktor	46
Gambar 4.17 Profil suhu sepanjang reaktor saat reaksi dekomposisi metana berjalan	47
Gambar 4.18 Hasil karakterisasi TEM untuk reaksi dekomposisi katalitik metana selama 5 jam pada suhu 700°C, tekanan 1 atm, <i>space time</i> 0,006 gr min/mL	47
Gambar 4. 19 Proses pertumbuhan beberapa CNT <i>junctions</i> (a) Y-junction CNT; (b) <i>multi-level</i> Y-junction CNT; (c) <i>multi-terminal</i> Y-junction CNT; (d) L-junction CNT; (e) <i>needle-like branched</i> T-junction CNT; (f) <i>four-terminal crossed-junction</i> CNT [32]	48
Gambar 4.20 Hasil XRD CNT untuk reaksi pada suhu 700°C dan <i>space-time</i> 0,006 gr min/mL	49
Gambar 4.21 Hasil karakterisasi TEM untuk reaksi dekomposisi katalitik metana selama 20 menit (a dan b); 1 jam (c dan d); 2 jam (e dan f); dan 5 jam(g dan h) pada suhu 700°C, tekanan 1 atm, <i>space time</i> 0,006 gr min/mL	50

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Perbandingan metode sintesis Nanokarbon(Wijaya 2008)	10
Tabel 4.1 Senyawa-senyawa yang terdeteksi pada katalis Ni-Cu-Al	37
Tabel 4.2 Konfigurasi pelat yang digunakan pada penelitian	40



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1. Perhitungan Kebutuhan Katalis	58
Lampiran 2. Data Kalibrasi Gas Chromatography	59
Lampiran 3. Data Kalibrasi <i>Flowmeter</i>	62
Lampiran 4. Pengambilan Data pada $T=700^{\circ}\text{C}$ dan $W/F=0,0006 \text{ gr min/mL}$	64
Lampiran 5. Pengambilan Data pada $T=700^{\circ}\text{C}$ dan $W/F=0,0032 \text{ gr min/mL}$	66
Lampiran 6. Pengambilan Data pada $T=700^{\circ}\text{C}$ dan $W/F=0,006 \text{ gr min/mL}$	68
Lampiran 7. Konsentrasi Gas pada $T=700^{\circ}\text{C}$ dan $W/F=0,006 \text{ gr min/mL}$	70
Lampiran 8. Hasil Karakterisasi XRD Katalis Ni-Cu-Al	71
Lampiran 9. Hasil Karakterisasi XRD Karbon pada $W/F = 0,006 \text{ gr min/mL}$; $T=700^{\circ}\text{C}$; $P= 1 \text{ atm}$	73

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Studi mengenai nanoteknologi merupakan salah satu studi yang sedang berkembang cepat sebagai bagian dari riset-riset dewasa ini. Salah satu riset nanoteknologi yang sangat berkembang adalah studi mengenai nanokarbon. Nanokarbon sendiri didefinisikan sebagai material karbon yang bukan hanya ukuran partikelnya saja yang berukuran nanometer akan tetapi struktur dan teksturnya pun berukuran nanometer. Nanokarbon diketahui memiliki luas permukaan spesifik yang sangat besar yaitu mencapai $1315 \text{ m}^2/\text{g}$ untuk jenis *single-walled carbon nanotube* [1]. Nanokarbon juga memiliki kombinasi sifat struktur yang sempurna, yakni ukuran yang kecil, densitas yang rendah, serta stabilitas yang tinggi. Karakteristik spesial dari nanokarbon membuatnya banyak diaplikasikan seperti *hydrogen storage*, *catalyst support*, adsorpsi, peralatan nanoelektronik dan nanomekanikal.

Salah satu metode yang efektif untuk mendapatkan nanokarbon adalah melalui dekomposisi katalitik metana. Departemen Teknik Kimia UI juga selama kurun waktu kurang lebih sepuluh tahun telah menginisiasi riset dekomposisi katalitik metana dengan reaksi sebagai berikut [2] : $\text{CH}_4 \rightarrow \text{C} + 2\text{H}_2$; $\Delta H_{298} = + 75 \text{ kJ/mol}$. . Dalam proses ini pemurnian CO tidak diperlukan lagi dan tidak menghasilkan CO_2 (gas rumah kaca) dikarenakan unsur karbon dalam metana dikonversikan menjadi nanokarbon. Selain ekonomis, reaksi dekomposisi katalitik metana merupakan metode sintesis nanokarbon yang menjanjikan karena produk yang tinggi dan mudah dikontrol [3].

Selain menghasilkan nanokarbon, dekomposisi katalitik metana juga menghasilkan hidrogen. Seperti yang kita ketahui, salah satu tantangan utama yang dihadapi dengan semakin pesatnya perkembangan populasi dan ekonomi secara global adalah menghasilkan lebih banyak energi namun juga membatasi emisi gas rumah kaca. Dengan semakin meluasnya bahaya pemanasan global, saat ini para peneliti kerap mencari sumber energi alternatif yang ramah lingkungan.

Hidrogen dan aplikasinya menjadi fuel cell dapat menjadi sumber energi alternatif yang menghasilkan energi yang besar dan ramah lingkungan. Jumlah energi yang dihasilkan selama pembakaran hidrogen lebih tinggi dari yang dihasilkan bahan bakar lainnya dalam basis massa, dengan nilai kalor yang rendah, yaitu 2,4 ; 2,8 ; atau 4 kali lebih tinggi dari metana, bensin, atau batu-bara [4]. Dengan aplikasi fuel cell yang mempunyai toleransi senyawa CO (10-20 ppm), proses dekomposisi katalitik metana dapat dibilang sangat sesuai. Kebutuhan energi yang diperlukan pun menjadi lebih sedikit dengan tidak dibutuhkannya proses pemurnian CO.

Reaksi dekomposisi metana merupakan reaksi endotermis yang berjalan pada suhu tinggi sehingga dibutuhkan katalis. Salah satu katalis yang baik untuk reaksi dekomposisi metana adalah katalis nikel. Katalis nikel dapat menurunkan energi aktivasi reaksi dekomposisi, mempunyai aktivitas yang lebih tinggi dibanding logam lainnya (Co dan Fe), memiliki kapasitas ukuran pori yang relatif tinggi untuk pertumbuhan karbon, karbon yang dihasilkan relatif tinggi dibanding logam lainnya (Co dan Fe), memiliki *toxicity* relatif rendah, dan harga relatif murah [5]. Namun katalis nikel mudah mengalami sintering, sehingga pada penelitian ini akan digunakan katalis Ni-Cu-Al. Promotor Cu mempunyai peran sebagai pencegah *sintering* dikarenakan partikel Cu akan menyisip diantara partikel Ni dan promotor tekstural alumina berperan sebagai *stronger-metal-interaction* (SMI) sehingga mencegah terjadinya sintering. Pada usulan penelitian ini digunakan katalis Ni-Cu-Al.

Pada penelitian ini akan digunakan reaktor katalis terstruktur. Dengan penggunaan reaktor ini diharapkan dapat menghindari masalah-masalah pada beberapa penelitian sebelumnya seperti penyumbatan akibat deposit karbon pada katalis yang menyebabkan kenaikan *pressure drop* pada reaktor unggun diam [6], pencampuran katalis yang tidak homogen pada *spouted bed reactor* [7], dan waktu tinggal yang singkat pada *fluidized bed reactor* sehingga tidak dihasilkan hidrogen yang murni [7; 8; 9; 10]. Sebelumnya sudah ada penelitian yang menggunakan reaktor katalis terstruktur *gauze* dan didapatkan bahwa reaktor katalis terstruktur dapat mencegah terjadinya *pressure drop* dan katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai lebih dari 33 jam dengan konversi metana tertinggi yang

didapatkan pada suhu 700°C adalah 94,87%, produk kemurnian hidrogen yang dihasilkan mencapai 95,14%, dan didapatkan hasil 200g C/g katalis [11]. Namun dengan penggunaan gauze seringkali terdapat penggumpalan pada kawat. Pada penelitian ini akan digunakan katalis terstruktur pelat sejajar. Katalis terstruktur ini memiliki luas permukaan yang lebih besar, katalis terlapis merata dan tidak ada yang menggumpal. Dengan penggunaan pelat, pertumbuhan nanokarbon pada substrat akan lebih seragam dan rapi serta kualitas nanokarbon yang dihasilkan lebih baik

1.2 Rumusan Masalah

Rumusan masalah pada penelitian ini adalah bagaimana mendapatkan *yield* tinggi pada produksi *carbon nanotube* dan kemurnian yang tinggi pada produksi hidrogen melalui dekomposisi katalitik metana dengan menggunakan reaktor katalis plat terstruktur.

1.3 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan memperoleh *space time* dengan hasil kinerja reaktor katalitik terstruktur pelat skala *bench* terbaik untuk produksi hidrogen dan *carbon nanotube* secara simultan melalui reaksi dekomposisi katalitik metana.

1.4 Batasan Masalah

Batasan pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

- Katalis yang digunakan pada penelitian ini adalah katalis Ni-Cu-Al dengan komposisi 2:1:1
- Suhu dan tekanan yang digunakan saat reaksi adalah 700 °C dan tekanan 1 atm
- *Space time* yang digunakan adalah 0,0006 ; 0,0032 ; dan 0,006 gr min/mL
- Preparasi katalis dilakukan dengan metode *sol-gel*
- Pelapisan katalis menggunakan metode *dip-coating*

1.5 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan dalam skripsi ini adalah sebagai berikut:

- BAB I** Pendahuluan
Berisi latar belakang, rumusan masalah, tujuan penulisan, batasan masalah, dan sistematika penulisan.
- BAB II** Tinjauan Pustaka
Berisi tinjauan literatur mengenai nanokarbon, reaksi dekomposisi katalitik metana, katalis pada reaksi dekomposisi katalitik metana, dan teknik preparasi katalis.
- BAB III** Metodologi Penelitian
Berisi penjelasan mengenai prosedur penelitian secara umum, termasuk di dalamnya preparasi dan pelapisan katalis, *set-up* rangkaian peralatan, sintesis nanokarbon, serta karakterisasi produk akhir.
- BAB IV** Hasil dan Pembahasan
Berisi uraian dan analisa terhadap data uji kinerja reaktor yang meliputi konversi, kemurnian hidrogen, dan *yield* karbon dari berbagai variasi *space time*, serta hasil karakterisasi produk nanokarbon.
- BAB V** Kesimpulan dan Saran
Berisi kesimpulan dan saran dari hasil penelitian dan pembahasan.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Metode Dekomposisi Katalitik Metana

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



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

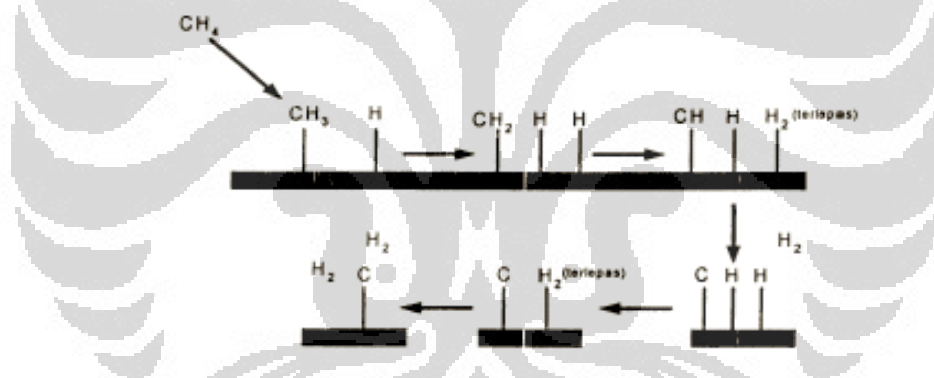
Selain itu, perkembangan penelitian dekomposisi metana secara umum dapat digolongkan menjadi:

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

Analisis termodinamika reaksi dekomposisi metana menyatakan bahwa nilai untuk energi bebas Gibbs (ΔG°) dan energi reaksi dekomposisi metana (ΔH°) pada suhu -75°C , masing-masing sebesar 50,8 kJ/mol dan 75 kJ/mol[12]. Nilai energi gibss bebas yang positif menunjukkan bahwa reaksi tidak akan bisa

berjalan dengan spontan. Walaupun reaksi dapat berjalan, konversi yang dihasilkan tidak akan maksimal. Dan nilai energi reaksi yang positif menandakan reaksi bersifat endotermis. Sehingga konversi akan meningkat seiring dengan meningkatnya suhu reaksi sehingga reaksi ini harus dilakukan pada suhu sangat tinggi. Oleh karena itu perlu ditambahkan katalis untuk menurunkan energi aktivasi untuk menurunkan temperatur reaksi. Proses yang dilakukan pada temperatur yang lebih rendah tentunya akan lebih hemat dari segi energi. Hal ini menjadi hal yang vital apabila diaplikasikan pada suatu proses industri.

Pada reaksi dekomposisi metana, sebuah molekul metana direngkah (*cracking*) menjadi sebuah molekul karbon dan dua buah molekul hidrogen. Gambar 2.1 menunjukkan mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana. Atom hidrogen terputus satu per satu membentuk ion karbonium. Pada akhirnya didapatkan sebuah molekul atom karbon dan dua molekul hidrogen di akhir reaksi.



Gambar 2.1 Mekanisme reaksi permukaan dekomposisi katalitik metana[11]

2.2 Produk Dekomposisi Katalitik Metana

2.2.1 Nano Karbon

Nano karbon didefinisikan sebagai material karbon yang bukan hanya ukuran partikelnya saja yang berukuran nanometer akan tetapi struktur dan teksturnya pun berukuran nanometer [13].

Pada tahun 2004 Michio juga membagi pengelompokan lebih lanjut dari nanokarbon, berdasarkan proses preparasinya adalah sebagai berikut [14]:

1. Karbon berukuran nano (*Nano-sized carbons*)

Material karbon yang berada pada ukuran skala nanometer, seperti *carbon nanotubes*, *carbon nanofilaments*, dan/atau *nanofibers*, dan *fullrenes*. Karbon jenis ini idibagi menjadi 3 kelompok:

- Karbon yang diproduksi dari vaporisasi *carbon clusters* atau *fragments*
- Karbon yang diproduksi dengan efek katalisis dari partukel logam berukuran nano
- Karbon yang diproduksi dari proses lain, seperti *templates*, *polymer blends*, dan lain-lain

2. Karbon berstruktur nano (*Nano-structured carbons*)

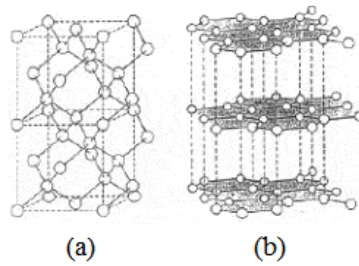
Material karbon yang struktur dan teksturnya didesain dan dikontrol pada skala nanometer. Karbon jenis ini dibagi menjadi empat kelompok:

- Karbon yang diproduksi dengan mengontrol pori berukuran nano
- Karbon yang diproduksi dengan mendesain struktur molekular dalam prekursor
- Karbon diproduksi dengan mengontrol proses karbonisasi prekursor
- Karbon yang terdiri dari komponen karbon yang berbeda dan diproduksi dengan mengontrol *interfaces* pada skala nanometer

Terdapat lima bentuk dasar dari nanokarbon, yaitu: intan, grafit, *fullerenes*, nanofilamen dan *nanococones*.

- Intan dan Grafit

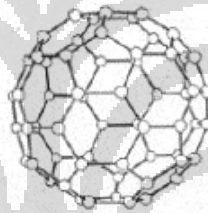
Intan dan grafit merupakan bentuk alotropik karbon yang paling dikenal karena keduanya yang paling pertama ditemukan. Intan memiliki karbon dengan empat ikatan sp^3 membentuk susunan tiga dirnensi yang simetris dan tersusun rapat. Sedangkan grafit memiliki karbon dengan tiga ikatan sp^2 membentuk susunan dua dimensi berupa lembaran tersusun dari ikatan heksagonal atom-atom karbon sp^3 [15]. Gambar 2.2 memperlihatkan bentuk alotropik intan dan grafit



Gambar 2.2 Bentuk alotropik karbon: (a) intan, (b) grafit [16]

- *Fullerene*

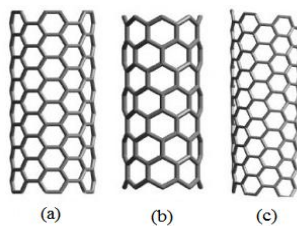
Fullerene merupakan bentuk alotropik ketiga setelah intan dan grafit yang ditemukan pada tahun 1985 oleh Kroto. *Fullerene* terdiri dari ikatan karbon-karbon sp^2 dan sp^3 yang membentuk bola, contohnya adalah C_{60} , yaitu *fullerene* yang terdiri dari 12 cincin pentana dan 20 cincin heksana [15]. Gambar 2.3 berikut memperlihatkan bentuk alotropik karbon *fullerene*.



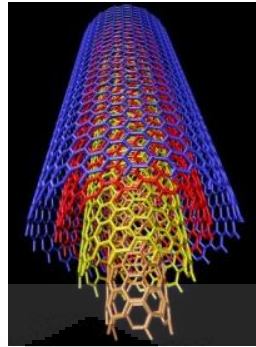
Gambar 2.3 Bentuk alotropik karbon *fullerene* [16]

- Nanofilamen

Karbon nanofilamen adalah nanokarbon yang berbentuk filamen-filamen. Secara umum, karbon nanofilamen terdiri dari *carbon nanofiber* (CNF) dan *carbon nanotubes* (CNT). CNT pertama kali ditemukan pada tahun 1991 oleh Sumio Iijima. CNT digambarkan sebagai *carbon nanofiber* yang memiliki lubang di bagian dalamnya sehingga menyerupai pipa (*tube*). Struktur CNT dapat dilihat pada Gambar 2.4 dan 2.5. CNT dan CNF merupakan bentuk karbon yang memiliki kekuatan yang sangat tinggi.



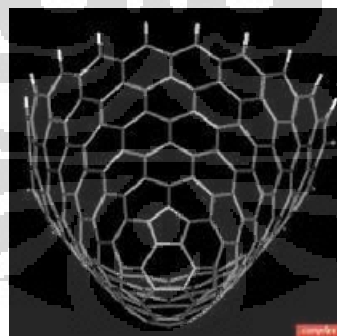
Gambar 2.4 Single Walled Carbon Nanotube (a) armchair
(b) zigzag (c) chiral [17]



Gambar 2.5 Multi-Walled Carbon Nanotubes [17]

- *Carbon cones*

Carbon cones pertama kali ditemukan pada tahun 1997 oleh Ebbesen. *Carbon cones* merupakan karbon dengan struktur berbentuk kerucut sempurna. Sifat mekanik, kimia, maupun elektrik dari karbon tersebut berbeda dari karbon-karbon sebelumnya. Hal tersebut membuka peluang untuk aplikasi nanokarbon yang lebih luas. Berbagai penelitian sedang dikembangkan untuk mengetahui hal tersebut. Struktur *carbon cones* dapat dilihat pada Gambar 2.6 berikut



Gambar 2.6 Struktur *carbon cone* [18]

Sifat-sifat yang dimiliki oleh nanokarbon dan pemanfaatannya dalam bidang industri, antara lain [3] :

- a. Memiliki kekuatan mekanis yang besar.

Karbon nanotube jenis SWNT memiliki kekuatan tensil sebesar 50-100 GPa dan bilangan modulus Young sebesar 1-2 Tpa. Sedangkan

karbon nanotube jenis MWNT memiliki kekuatan tensile dan modulus Young masing-masing sebesar 11-63 GPa dan 270-950 GPa

b. Memiliki konduktivitas elektronik yang besar.

Penambahan nanokarbon dalam konsentrasi rendah ke bahan plastik dapat memberikan efek konduktivitas elektrik. Hal ini memungkinkan pengerjaan *electrostatic painting* dalam proses pelapisan *sparepart* otomotif.

c. Memiliki rasio panjang terhadap diameter yang tinggi sehingga memungkinkan aplikasi nanokarbon sebagai bahan komposit.

d. Karbon nanotube dapat digunakan sebagai pelapis anti-statis untuk mencegah bahaya sensitivitas komponen elektronik ketika sedang dalam penyimpanan dan proses perkapalan

Terdapat beberapa metode yang dapat digunakan untuk mendapatkan nanokarbon, yang dapat dilihat pada Tabel 2.1 berikut

Tabel 2.1Perbandingan metode sintesis Nanokarbon[19]

Metode	Arc Discharge	Chemical Vapour Deposition	Laser Ablation	Dekomposisi Katalitik Metana
Prinsip Kerja	Menghubungkan dua elektroda grafit pada sumber listrik, dipisahkan sejauh beberapa milimeter. Pada arus 100 A, karbon akan menguap dan membentuk plasma	Meletakkan substrat pada oven, dipanaskan hingga 600oC, dan ditambahkan gas berkarbon secara perlahan-lahan. Saat gas terdekomposisi, atom karbon terbebas, dan akan membentuk CNT	Grafit diuapkan oleh sinar laser untuk membentuk gas karbon yang akan membentuk CNT	Gas metana dialirkan dan direaksikan dengan katalis yang telah dipersiapkan dalam reaktor pada temperatur tinggi dan akan terbentuk nanokarbon pada permukaan katalis
Yield	30-90%	20-100%	Di atas 70%	Bervariasi
Pro	Mudah untuk memproduksi SWNT dan MWNT. SWNT	Mudah untuk di scale-up hingga tahap industri.	Sebagian besar menghasilkan SWNT dengan	Paling ekonomis. Bahan baku yang digunakan tidak

	memiliki sedikit defect dan MNWT diproduksi tanpa katalis dan tidak terlalu mahal. Dapat disintesis pada keadaan terbuka	Dapat menghasilkan SWNT panjang, diameternya dapat dikontrol, juga cukup murni	sedikit <i>defect</i> . Diameternya dapat dikontrol dan cukup murni.	terlalu mahal. Proses pemurniannya sederhana dan diameternya dapat dikontrol oleh ukuran katalis.
Kontra	CNT pendek dan memerlukan purifikasi	Menghasilkan sebagian besar MNWT dengan banyak <i>defect</i>	Teknik yang mahal, karena memerlukan laser dan energi yang besar	Katalis yang digunakan akan mengalami deaktivasi

2.2.2 Hidrogen

Hidrogen bersifat sangat mudah terbakar. Kehadiran senyawa H₂ pada konsentrasi 4% saja dalam udara dapat menimbulkan reaksi pembakaran berikut[2] :



Hidrogen adalah bahan bakar alternatif yang sangat menjanjikan karena selama dibakar tidak menghasilkan polutan sama sekali sehingga mengurangi jumlah gas rumah kaca. Belakangan ini, hasil penelitian menunjukkan bahwa hidrogen bisa diaplikasikan baik secara teknologi maupun dari ekonomi[5]. Oleh karena itu, hidrogen sangat diharapkan dapat menggantikan bahan bakar fosil di masa yang akan datang.

Selain itu, hidrogen adalah bahan bakar yang paling menjanjikan untuk *fuel cell* atau sel bahan bakar. Keharusan akan kemurnian hidrogen sebagai bahan bakar sangat tergantung dari jenis sel bahan bakarnya. Sel bahan bakar yang bekerja pada temperatur tinggi bisa mentoleransi kehadiran CO_x (CO dan CO₂), 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 [20]. Akan tetapi, kebanyakan produksi hidrogen yang ada sekarang, seperti *steam reforming*, *auto-thermal reforming*, dan oksidasi

parsial metana menghasilkan CO dalam jumlah yang besar sebagai produk samping. Pemurnian CO ini memerlukan metode yang kompleks dan mahal.

2.3 Katalis Pada Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

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

Katalis yang efisien untuk reaksi ini adalah yang paling tahan terhadap adanya akumulasi karbon dalam jumlah besar sesuai dengan konversi metana yang bersangkutan. Saat ini, katalis yang paling banyak digunakan sebagai inti aktif dalam dekomposisi metana ini berasal dari logam transisi golongan VIII. Tetapi, tidak semua logam tersebut menunjukkan aktivitas yang baik untuk proses dekomposisi metana.

Kriteria pemilihan katalis yang akan digunakan dalam reaksi dekomposisi metana antara lain keaktifan, toksisitas yang rendah, ketahanan terhadap deaktivasi, dan harga. Kriteria tersebut di atas dapat dipengaruhi sifat masing-masing penyusunnya yang terdiri atas:

1. Inti aktif katalis

Suatu katalis memiliki sebuah unsur utama penentu aktivitas katalis yang disebut inti aktif katalis. Logam yang paling banyak digunakan adalah dari golongan VIII, antara lain Ni, Co, dan Fe.

Banyaknya inti aktif berpengaruh pada banyaknya molekul metana yang teradsorpsi oleh katalis. Semakin banyak inti aktif maka akan semakin banyak pula produk karbon yang dihasilkan. Namun penambahan inti aktif pada katalis hanya menambah produk sampai batas maksimum tertentu [15]

2. Promoter [21]

Promotor merupakan material tambahan yang ditambahkan dengan tujuan meningkatkan aktivitas, selektivitas, maupun stabilitas. Promotor diklasifikasikan menjadi dua jenis:

a. *Textural Promoters*

Textural promoters adalah material inert yang berukuran sangat kecil yang ditambahkan pada katalis untuk menghambat terjadinya *sintering* partikel katalis yang berbentuk mikrokristal. Material tersebut akan memisahkan partikel-partikel inti aktif sehingga partikel inti aktif tidak melebur menjadi satu dengan cara berada di antara partikel-partikel inti aktif

Textural Promoters yang digunakan harus berukuran lebih kecil dari inti aktif dan dapat terdispersi dengan baik sehingga ia dapat masuk di antara partikel inti aktif. Namun selain itu *textural promoters* juga tidak boleh beraksi dengan inti aktif.

b. *Structural Promoters*

Structural promoters akan mempengaruhi sifat kimia dari katalis dengan cara merubah komposisi kimia katalis tersebut. *Structural promoters* yang dipilih sebaiknya memiliki afinitas elektron yang tinggi terhadap struktur grafit sehingga dapat menghambat terbentuknya lapisan grafit pada permukaan inti aktif. Selain itu juga sebaiknya memiliki titik leleh yang rendah, dengan demikian dapat terbentuk katalis bersifat *liquid* dengan temperatur yang lebih rendah

3. Penyangga

Suatu penyangga adalah substansi inert yang membantu penyebaran katalis atau dengan kata lain meningkatkan kekuatan mekanis katalis yang lemah. Penyangga juga dapat meningkatkan aktivitas katalis dan dapat juga bereaksi dengan katalis selama proses pembuatan berlangsung. Penggunaan penyangga hanya mampu dilakukan dengan proses *loading* inti aktif yang sedikit, sehingga inti

aktif berpenyangga hanya menghasilkan karbon yang sedikit namun dengan kualitas yang lebih baik karena partiklanya sangat terdispersi dengan baik.

Salah satu katalis yang digunakan dalam proses dekomposisi metana adalah katalis yang berbasis Ni. Nikel sering digunakan sebagai inti aktif, karena memiliki kelebihan dari logam lain (seperti Fe dan Co) sebagai berikut [5]:

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

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

Penambahan promotor baik *structural promotor* maupun *textural promotor* dapat mencegah terjadinya sintering. *Structural promotor* yang biasa digunakan dalam penelitian adalah logam Cu[22; 12; 23]; karena dapat menurunkan titik leleh katalis dan meningkatkan aktivitas katalis. Titik leleh katalis yang rendah diperlukan karena kondisi katalis dalam keadaan liquid diperlukan sebagai syarat terbentuknya karbon nanotubes[22]. Cu mempunyai afinitas yang tinggi terhadap struktur grafit sehingga menghambat terbentuknya

lapisan karbon pada grafit dan menghambat laju pertumbuhan deposit karbon pada permukaan Ni serta mencegah pembungkusan partikel katalis oleh lapisan karbon. Di samping itu Cu menambah mobilitas hidrogen dalam reaksi hidrogenasi katalitik sehingga meningkatkan *yield* hidrogen[24]. Penambahan *textural promotor* yang banyak digunakan adalah senyawa *hard to reduce oxide*, seperti Al_2O_3 [22; 12; 23], SiO_2 [25], MgO , Nb_2O_5 .

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

2.4 Metode Preparasi Katalis Dengan Sol Gel

Metode *sol-gel* merupakan proses yang berhubungan dengan transisi sistem dari liquid “sol” (biasanya koloid) ke dalam fasa solid “gel”. Material awal, disebut sebagai prekursor, yang biasa digunakan dalam preparasi “sol” biasanya merupakan logam inorganik atau senyawa logam. Prekursor yang paling jelas adalah molekul yang mempunyai ikatan logam-oksigen, dinamakan logam aloksida $\text{M}(\text{OR})_n$ atau oksoaloksida $\text{MO}(\text{OR})_n$ (R= senyawa jenuh atau tak jenuh, alkil atau aril).

Teknik preparasi katalis dengan metode *sol-gel* merupakan salah satu teknik yang paling sering digunakan pada dekomposisi katalitik metana. Kelebihan utama pada metode *sol-gel* untuk preparasi material adalah temperatur proses yang rendah dan fleksibilitasnya. Teknik ini memang sudah banyak digunakan secara luas untuk bidang katalis. Karakteristik paling penting dari preparasi *sol-gel* material katalis adalah kemudahannya untuk dikontrol sehingga didapatkan kelebihan-kelebihan berikut:

- Kemampuan untuk menjaga kemurnian yang tinggi
- Kemampuan untuk mengganti karakteristik fisik seperti distribusi ukuran pori dan volume pori

- Kemampuan untuk memvariasikan komposisi homogeneitas pada tingkat molekular
- Kemampuan untuk mempersiapkan pada temperatur rendah
- Kemampuan untuk menghasilkan sampel-sampel dengan bentuk fisik yang berbeda

2.5 Teknik Pelapisan Katalis Dip-Coating

Ada beberapa teknik yang dapat digunakan untuk pelapisan katalis untuk membentuk lapisan tipis (*thin film*) yang disebut dengan teknik pelapisan (*coating*) antara lain: pencelupan (*dip-coating*), *spin coating*, dan *spraying*. Coating ini diterapkan pada material yang disebut sebagai substrat. Pada penelitian ini digunakan metode pelapisan dengan cara pencelupan atau *dip coating*.

Teknik *dip-coating* merupakan teknik pelapisan *sol-gel* yang paling sederhana. Teknik *dip-coating* adalah proses dimana substrat yang akan dilapisi dicelup ke dalam larutan sol dan diangkat dengan kecepatan tertentu pada suhu dan kondisi atmosfer yang terkontrol. Metode ini telah luas digunakan terutama untuk mendapatkan lapisan yang seragam dengan ketebalan kurang lebih 100 nm. Pelapisan katalis film pada membran dilakukan dengan metode ini karena katalis yang dihasilkan relatif tipis. Prosedur *dip-coating* secara umum dibagi menjadi tiga tahap, yaitu:

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

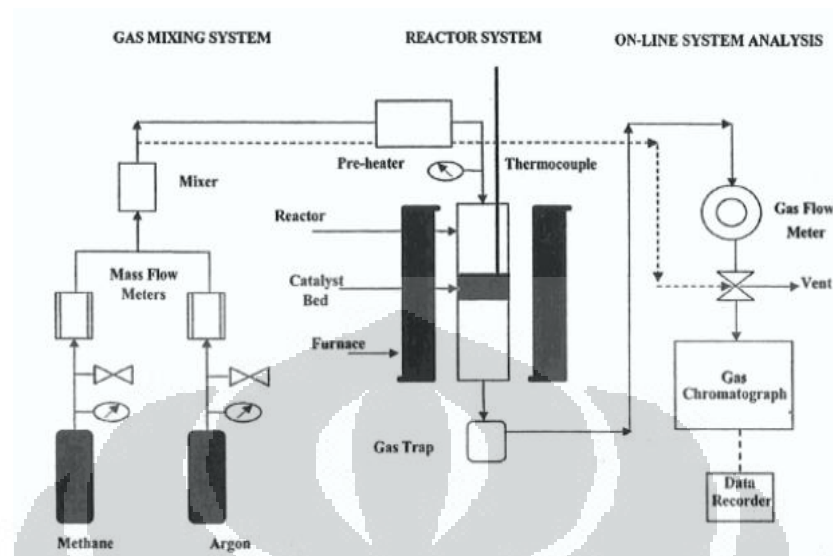
Prosedur tersebut dapat diulang beberapa kali untuk mendapatkan ketebalan lapisan yang diinginkan.

2.6 Reaktor Untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

2.6.1 Fixed Bed Reactor

Jenis reaktor yang umumnya digunakan untuk reaksi dekomposisi metana skala besar adalah reaktor unggun diam (*fixed bed reactor*). Reaktor unggun diam lebih mudah digunakan bila katalisnya memiliki *lifetime* yang lama. Reaktor ini mengalami penyumbatan akibat deposisi karbon pada katalis yang menyebabkan

kenaikan jatuh tekanan (*pressure drop*)[12]. Sistem *fixed-bed reactor* untuk reaksi dekomposisi metana dapat dilihat pada Gambar 2.7.



Gambar 2.7 Sistem *fixed-bed reactor*[26]

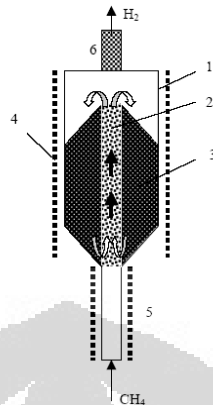
Penelitian dekomposisi metana dengan jenis reaktor ini pernah dilakukan Siang Piao dengan konversi yang dihasilkan sebesar 47%, terdapat penyumbatan dan *pressure drop* yang tinggi, serta *lifetime* katalis hanya sekitar 1 jam [27]. Selain itu, pada penggunaan reaktor *fixed-bed* juga terdapat fluktuasi tekanan di dalam reaktor saat regenerasi sehingga menyebabkan perubahan yang sangat signifikan pada morfologi bed dan terdapat kemungkinan *partial blocking* pada reaktor[28].

2.6.2 Spouted Bed Reactor

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

Sebagian katalis akan terbawa aliran metana di sepanjang *spouting zone* dan akan tersempur keluar di bagian atas *spouting zone*. Penetapan kecepatan superficial gas 2 cm/s dan rasio tinggi terhadap diameter reaktor sebesar 5-6 dilakukan untuk memperoleh fluidisasi katalis yang homogen. Akan tetapi, penetapan ini masih menghasilkan pencampuran katalis yang tidak merata (homogen) sehingga konversi metana yang dihasilkan sangat kecil yaitu 7 %

akibat singkatnya kontak antara metana dengan katalis. *Spouted bed reactor* yang digunakan oleh Muradov dapat dilihat pada Gambar 2.7.



Gambar 2.8 Spouted bed reactor: (1) dinding luar reaktor, (2) spouting zone, (3) katalis, (4) electric heater, (5) pre-heater, dan (6) filter [7]

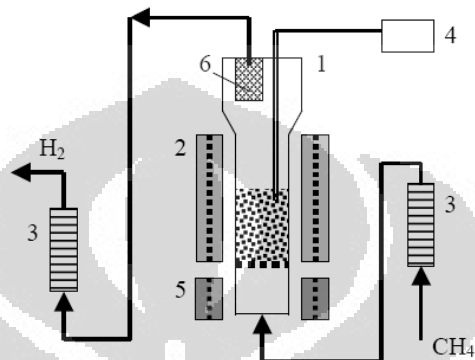
2.6.3 Fluidized Bed Reactor

Muradov, 2001 menggunakan jenis reaktor *Fluidized Bed Reactor* (FBR) sebagai alternatif untuk operasi skala besar menggantikan reaktor unggun diam yang mempunyai perbedaan tekanan jatuh yang tinggi akibat deposit karbon. Metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tertentu sehingga menyebabkan katalis terfluidisasi sehingga memberikan kenaikan perpindahan panas dan perpindahan massa dari partikel ke gas.

Selain menggunakan SBR, Muradov pun menggunakan *fluidized bed reactor* (FBR). FBR sudah digunakan secara luas dalam industri kimia, metalurgi, dan perminyakan. Metana dialirkan dari dasar reaktor dengan kecepatan tertentu sehingga menyebabkan katalis terfluidisasi. Selama fluidisasi akan terjadi kontak antara katalis dengan metana selama waktu tertentu yang lamanya dapat dikontrol dengan menentukan rasio antara kecepatan umpan dengan massa katalis. Berdasarkan hasil penelitian ini, setelah 1,5-2 jam laju dekomposisi metana mulai menurun karena berkurangnya permukaan inti katalis akibat deposit karbon. Sistem reaktor yang digunakan oleh Muradov dapat dilihat pada Gambar 2.8.

FBR sesuai untuk reaksi kontinu dan mampu mengikis partikel karbon dari reaktor sehingga mencegah terjadinya deposit karbon tetapi konversi metana masih rendah $< 40\%$ akibat waktu tinggal reaktan yang singkat sehingga hidrogen yang diperoleh tidak murni [7]. Pengontrolan laju alir umpan juga sulit karena

perubahan ukuran partikel katalis selama reaksi dan terjadi aglomerasi dan *sticking* dari partikel-partikel nano. Namun FBR yang digunakan hanya mampu memproduksi CNT skala besar menggunakan kandungan hidrogen yang tinggi dan bukan metana dengan metode sintesis CVD. Morancais, 2007 menggunakan FBR untuk produksi CNT skala besar dari Dekomposisi etilen.

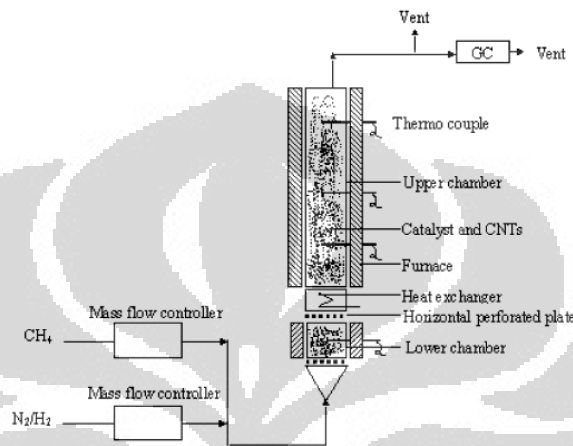


Gambar 2.9 Sistem reaktor: (1) fluidized bed reactor, (2) electric heater, (3) flow meter, (4) suhu controller, (5) pre-heater, dan (6) filter [10]

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

Penelitian Weizhong dan Qian, 2002, menggunakan *two-stage fluidized bed reactor* (Gambar 2.10) yang memungkinkan suhu berbeda untuk *stage* yang berbeda pada dekomposisi metana dalam menjaga kesetimbangan antara produksi dan difusi karbon saat operasi kontinu memerlukan reaktor bersuhu rendah dan untuk memutus ikatan kuat C-H dari metana yang reaksinya endotermis

memerlukan reaktor bersuhu tinggi. FBR 2 tahap dilakukan dengan menggunakan *lower stage* menggunakan suhu rendah yaitu 773 K, sedangkan *upper stage* menggunakan suhu tinggi yaitu dari 773 K sampai 1123 K. Hal ini menyebabkan katalis yang terfluidisasi dapat mendekomposisi metana dengan aktivitas tinggi pada suhu tinggi dan karbon dapat berdifusi secara efektif untuk membentuk CNT pada daerah bersuhu rendah dan tinggi.

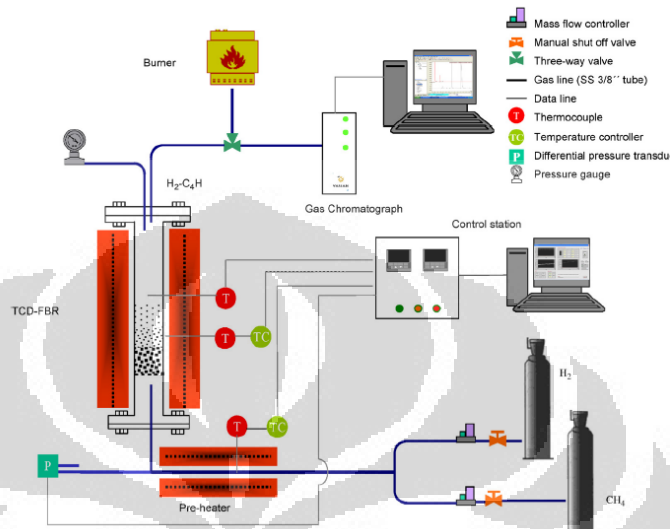


Gambar 2.10 Two-stage fluidized bed reactor [9]

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

FBR skala pilot seperti pada Gambar 2.11 yang telah dilakukan semi kontinu dengan menggunakan katalis bubuk Ni/Cu/Al yang dipreparasi dengan metode co-presipitasi dan menghasilkan 60 liter per jam hidrogen dan 15 gram per jam CNT. Sistem FBR ini menyediakan aliran konstan dari padatan yang melewati zona reaksi, sehingga sistem ini sesuai untuk reaksi kontinu. Unggun partikel katalis dalam FBR ini berkelakuan sebagai bagian dari liquid yang tercampur dengan baik sehingga meningkatkan perpindahan massa dan perpindahan panas yang tinggi antara partikel dengan gas. Tetapi FBR ini mempunyai problem penyumbatan reaktor akibat deposisi karbon sehingga sering dilakukan 'shut down'. Pinilla pada tahun 2007 menggunakan reaktor FBR ini dengan katalis bubuk yang dipreparasi dengan metode co-presipitasi dan metode fusion serta memperbaiki reaktor semi kontinu ini menjadi reaktor kontinu dengan

menggunakan Kanthal (logam alloy yang terbentuk dari lapisan oksida yang sangat stabil pada suhu tinggi) dan membagi reaktor menjadi 2 tahap dan pengoperasian dilakukan dengan komputer. FBR diharapkan dapat menghasilkan hidrogen dan nanokarbon secara simultan.



Gambar 2.11 Skema *Fluidized Bed Reactor* Semi Kontinu Skala Pilot [29]

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

2.6.4 Reaktor CVD

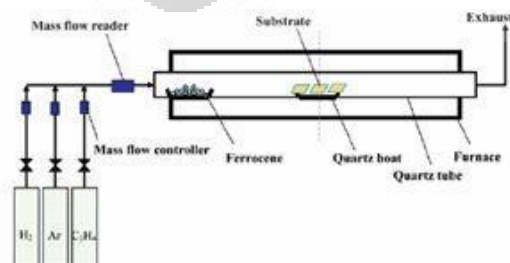
Pada tahun 2002, Ruth Zhang melakukan penelitian mengenai pembentukan SWNT via *reduced-pressure CVD* dengan menggunakan gas metana dan katalis besi/ molibdenum dengan *support* nanopartikel alumina. Temperatur operasi yang digunakan adalah 700⁰C-900⁰C dan tekanan 100 Torr. Katalis yang digunakan adalah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

didapatkan hasil SWNT dengan diameter 1,4 atau 2,6 nm dan juga multi wall dengan diameter 2,8 nm atau 3,9 nm.

Simone Musso pada tahun 2007 melakukan penelitian tentang optimalisasi pertumbuhan karbon *nanotube* pada substrat silikon yang tidak dilapisi dengan metode CVD. Penelitiannya menggunakan CVD reaktor yang terdiri dari tabung kuarsa dengan panjang 100 cm dan diameter 4,2 cm. *Furnace* yang digunakan memiliki panjang 60 cm. Suhu operasi yang digunakan adalah 800⁰C-1100⁰C dan tekanan atmosferik. Sumber katalis adalah *ferrocene* (kemurnian 98%) , substrat silikon, camphor sebagai prekursor karbon, dan gas nitrogen sebagai gas inert. Hasil yang didapatkan adalah CNT dengan diameter 40nm dan ketebalan beragam antara beberapa mikrometer hingga 1 milimeter.

Suppriya Chakrabarti (2006), melakukan penelitian tentang pertumbuhan vertikal karbon *nanotube* dengan menggunakan teknik CVD. Sumber gas yang digunakan adalah gas etilen, *carrier gas* adalah gas hidrogen dan gas helium, dan menggunakan uap air. Uap air digunakan untuk membantu menghilangkan karbon amorf yang terdapat di permukaan katalis. Substrat yang digunakan adalah Si yaitu SiO₂ dan juga lapisan Al₂O₃. Katalis yang digunakan adalah Fe. Suhu operasi 750⁰C dan tekanan 1 atm. Hasil yang didapatkan adalah SWNT dengan diameter antara 2-3nm dan 80% dari CNT yang dihasilkan merupakan SWNT.

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



Gambar 2.12Reaktor CNT[30]

2.6.5 Reaktor Katalis Terstruktur

Riset menggunakan reaktor katalitik terstruktur dengan penggunaan gauze (*wire mesh*) skala kecil (1 cm diameter) [31] sudah pernah dilakukan untuk mengatasi permasalahan-permasalahan pada reaktor reaksi dekomposisi metana, khususnya permasalahan *pressure drop*. Riset pertama kali dilakukan dalam skala kecil dengan menggunakan reaktor mikro seperti pada Gambar 2.14 berikut dengan katalis Ni-Cu-Al



Gambar 2.13 Reaktor katalis terstruktur (a) sebelum reaksi dan (b, c) setelah reaksi [31]

Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis Ni-Cu-Al mampu bertahan sampai 24 jam dengan penurunan laju alir yg relatif kecil sekitar 10% sehingga dapat disimpulkan reaktor katalis terstruktur dapat mengatasi permasalahan penyumbatan pada reaktor unggun diam. Selain itu kualitas nanotube yang dihasilkan cukup baik dengan diameter 30-50 nm dan ketebalan dinding 10-20 nm dan kemurnian hidrogen mencapai 99%.

Penelitian reaktor gauze untuk reaksi dekomposisi metana kembali dilanjutkan dengan basis skala produksi yang lebih besar sekitar 0,15 kg per hari, dan suhu reaksi 650°C dan 700°C [11]. Dari penelitian tersebut didapatkan konversi metana hingga 87,55% dan 94,87% serta kemurnian hidrogen hingga 87,53% dan 95,14%. Katalis yang digunakan pun mampu bertahan hingga 33 jam.

Selanjutnya penelitian lanjutan mengenai pengaruh kondisi operasi (temperatur, spacetime, komposisi gas umpan) terhadap reaktor katalis terstruktur gauze dilakukan pada tahun 2008[32].

2.7 Space-Time

Space time adalah waktu yg diperlukan oleh suatu zat berada dalam kolom. *Space time* dapat dijelaskan dengan persamaan berikut

$$\tau = \frac{V}{v} \quad (2.3)$$

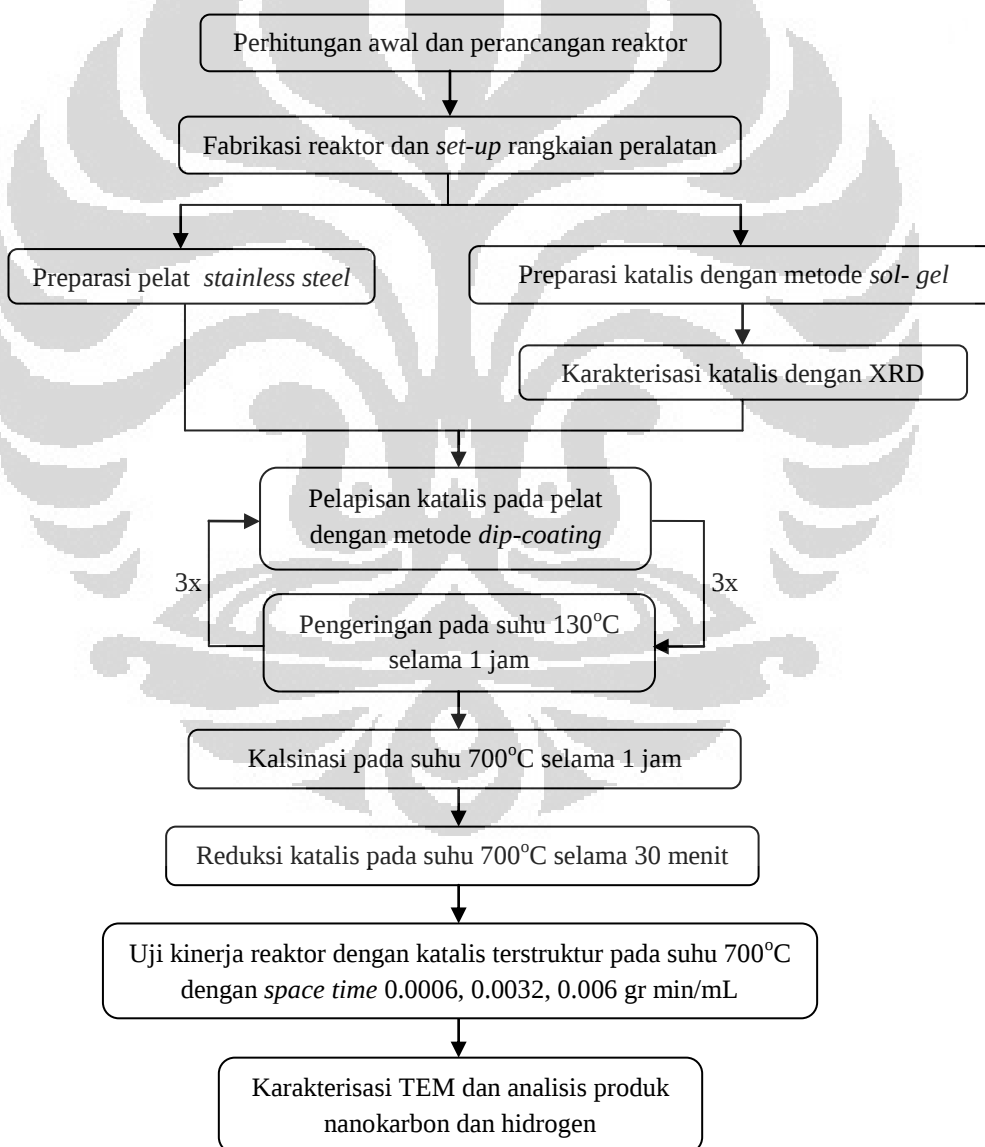
Dimana V adalah volume kolom (m^3) dan v adalah laju volumetric (m^3/s). Jika kolom itu adalah reaktor, maka definisi ini identik dengan *residence time*. Dan jika reaktor tersebut merupakan reaktor katalitik dengan katalis padat, maka *space time* bisa dinyatakan dlm W/F reaktan, dimana F adalah laju alir molar, bukan laju volumetrik. Namun untuk reaktan tunggal fasa gas, hal itu sama saja, karena mol sebanding dengan volum pada fasa gas. Semakin besar 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 konversi kesetimbangan.

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Diagram Alir Penelitian

Penelitian akan dilakukan di Laboratorium Rekayasa Produk Kimia dan Bahan Alam, Departemen Teknik Kimia Departemen Teknik Kimia FTUI, Depok. Secara garis besar, penelitian ini terbagi menjadi perancangan reaktor, pembentukan konfigurasi internal reaktor katalis terstruktur pelat, preparasi serta pelapisan katalis dengan metode *sol-gel* katalis dan metode *dip-coating*, serta uji kinerja reaktor. Gambar 3.1 menunjukkan diagram alir penelitian yang dilakukan.



Gambar 3.1 Diagram alir penelitian

3.2 Alat Dan Bahan

Peralatan yang digunakan selama penelitian adalah sebagai berikut:

- Beaker Glass
- Gelas ukur
- Spatula
- Timbangan digital
- Cawan keramik
- Integrator
- Termometer
- Termokopel
- *Soap bubbler*
- *Hot Plate*
- *Magnetic Stirrer*
- *Digital Atmospheric Furnace*
- *Tube Furnace*
- *Gas Chromatography*
- *Flowmeter*

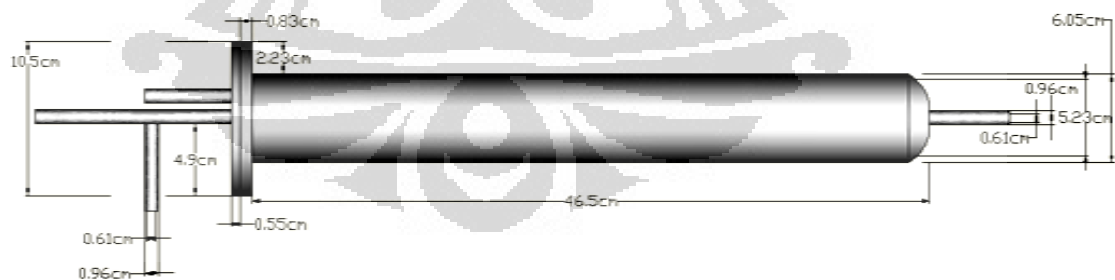
Bahan-bahan yang digunakan selama penelitian adalah sebagai berikut:

- Nickel nitrate hexahydrate, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Aluminium nitrate trihydrate, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Copper nitrate nonahydrate, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, Merck
- Citric Acid, $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$, JT Baker
- *Deionized (demineralized) water*
- Aseton
- Asam Nitrat
- Pelat *Stainless Steel 316*
- Gas Metana
- Gas Hidrogen
- Gas Argon
- Gas Nitrogen

3.3 Prosedur Penelitian

Tahap 1 : Perancangan reaktor katalis terstruktur pelat

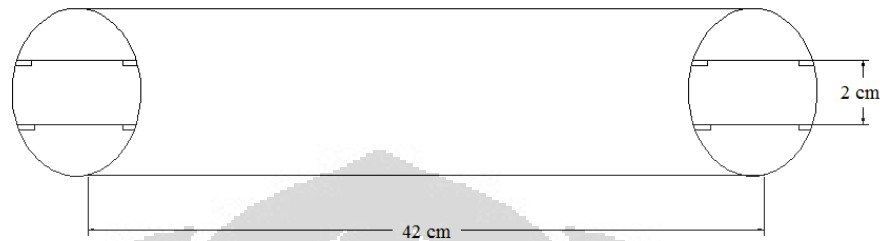
Tahap ini diawali dengan merancang tabung reaktor yang akan digunakan pada penelitian ini. Reaktor dibuat dari bahan stainless steel dengan diameter dalam 5,2 cm, diameter luar 6 cm dan panjang 46,5 cm. Desain reaktor yang difabrikasi dapat dilihat pada Gambar 3.2 berikut ini:



Gambar 3.2 Rancangan reaktor

Pada penelitian reaksi dekomposisi katalitik metana ini digunakan substrat katalis terstruktur. Struktur substrat katalis terstruktur berbentuk pelat sejajar. Pelat terbuat dari stainless steel dengan ukuran panjang x lebar x tebal sebesar 420 mm x 35 mm x 1 mm. Struktur substrat pelat yang digunakan terbuat

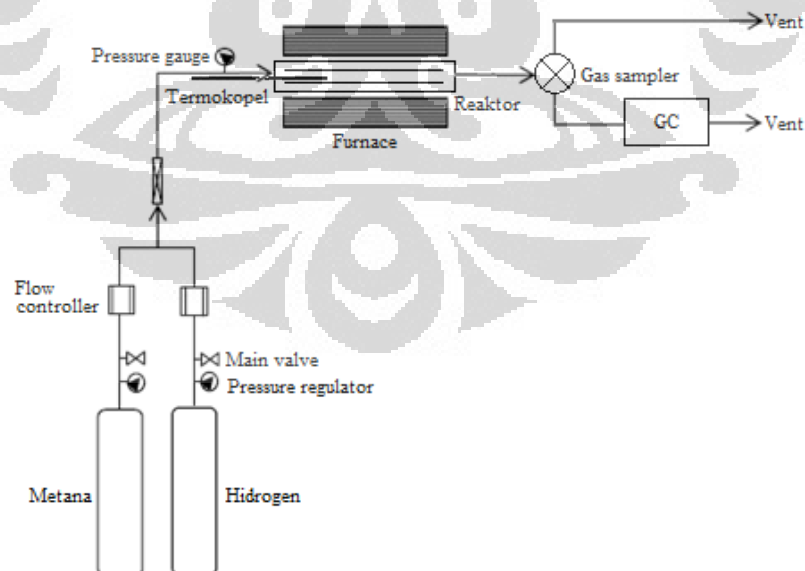
dari *stainless steel* karena *plate* akan digunakan untuk reaksi pada suhu $700\text{ }^{\circ}\text{C}$, sehingga bahan yang digunakan harus memiliki titik leleh di atas suhu reaksi tersebut. Pelat sebanyak dua buah akan diletakkan di dalam reaktor dengan posisi sejajar, maka di dalam reaktor akan dibuat rak seperti pada Gambar 3.3 berikut:



Gambar 3.3 Rancangan posisi pelat dalam reaktor

Tahap 2 :Set-Up Rangkaian Peralatan

Setelah reaktor telah selesai difabrikasi, tahap penelitian berikutnya adalah merangkai peralatan yang akan dipakai pada penelitian, seperti tabung gas, *flow* meter, reaktor, serta aliran menuju vent dan GC. Rangkaian peralatan dapat dilihat pada Gambar 3.4.



Gambar 3.4Rangkaian peralatan penelitian

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

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

1. Seluruh logam nitrat yang terdiri dari 258, 47 gram $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 107,37 gram $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, dan 166,72 gram $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan ke dalam *deionized water* sebanyak 2000 ml.
2. Asam sitrat sebanyak 850,59 gram ditambahkan ke dalam larutan tersebut.
3. Larutan diaduk selama 1 jam pada temperatur 80°C hingga membentuk larutan sol yang sangat *viscous* (kental).

Tahap 4:Karakterisasi Katalis

1. Melakukan kalsinasi katalis di dalam *digitalfurnace* selama 1 jam dengan suhu 700°C
2. Melakukan analisa XRD untuk mengkarakterisasi komponen kristalinitas dan senyawa yang terbentuk

Tahap 5: Pelapisan katalis dengan metode *dip-coating*

1. Pelat yang telah dibentuk direndam di dalam aseton untuk menghilangkan pengotornya, lalu dicuci dengan air untuk membilas aseton yang masih menempel di permukaan pelat, kemudian dikeringkan.
2. Pelat direndam dalam larutan asam nitrat untuk menciptakan lapisan nitrat (seperti nikel nitrat) pada permukaan *mesh* yang lebih cocok dan reaktif dengan prekursor katalis nitrat lalu dikeringkan
3. Menimbang berat awal substrat (W_0)
4. Substrat direndam dalam larutan katalis *sol-gel*.
5. Substrat diangkat dengan kecepatan konstan dengan menggunakan *integrator* lalu dikeringkan di dalam *digital atmospheric furnace* pada temperatur 130°C selama 1 jam.
6. Menimbang berat substrat (W_1)
7. Mengulang prosedur nomor 2 s/d 5 beberapa kali agar *loading* katalis yang melekat pada kawat lebih besar.
8. Substrat dikeringkan dan kemudian dikalsinasi pada suhu 700°C
9. Menimbang berat akhir substrat (W_4)

Tahap 9: Uji kinerja reaktor dan karakterisasi produk nano karbon

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

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

Uji kinerja reaktor dilakukan pada temperatur 700 °C dan tekanan atmosferik. Adapun tahapannya sebagai berikut:

1. Memasukkan katalis terstruktur dalam reaktor
2. Mengalirkan gas nitrogen untuk uji kebocoran
3. Set temperatur reaksi dalam tube *furnace* pada temperature 700 °C.
4. Mengalirkan gas hidrogen pada suhu atmosferik, dengan laju alir 50 mL/menit selama 30 menit.
5. Mengalirkan gas metana pada suhu atmosferik, dengan *space time* 0,0006 gr min/mL
6. Mengambil data laju alir produk serta peak area produk setiap periode tertentu (setiap 10 menit selama 1 jam pertama, dan setiap 30 menit selanjutnya sampai 5 jam) dengan *Gas Chromatography* (GC).
7. Menimbang berat pelat setelah produksi dan reaksi dihentikan, menghitung berat *carbonnanotube* yang telah terbentuk dan menempel pada katalis terstruktur.
8. Mengulang langkah 1-8 untuk variasi *space time* 0,0032 gr min/mL dan 0,006 gr min/mL
9. Mengolah data untuk menghitung parameter kinerja produksi. Kinerja produksi yang diamati meliputi kemampuan konversi metana, hidrogen

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

$$X_{\text{CH}_4} = \frac{[(\text{CH}_4\text{in}) - (\text{CH}_4\text{out})]}{(\text{CH}_4\text{in})} \times 100\% \quad (3.1)$$

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

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

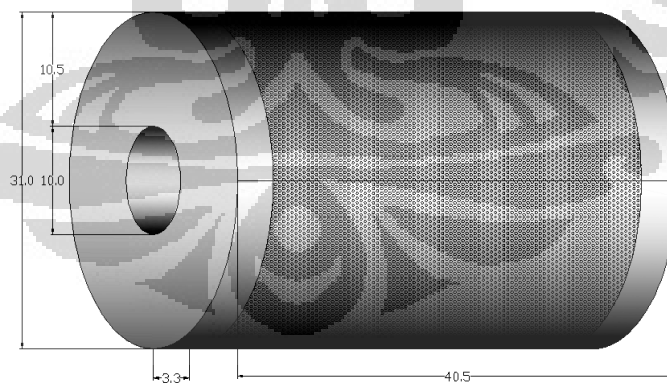
$$\text{Kemurnian H}_2 = \frac{[\text{H}_2]\text{produk}}{\text{total produk}} \times 100\% \quad (3.3)$$

10. Karakterisasi produk karbon yang dihasilkan. Karakterisasi produk karbon nanotube diperlukan untuk mengetahui properti nanokarbon yang dihasilkan seperti diameter nanotube. Karakterisasi yang dilakukan adalah dengan TEM (*Transmission Electron Microscopy*). Karakterisasi produk juga dilakukan dengan menggunakan XRD.

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Hasil Perancangan Reaktor Katalis Terstruktur

Reaktor katalis terstruktur dalam penelitian ini dibuat dengan tujuan untuk melakukan studi kinetika reaksi dekomposisi katalitik metana. Reaktor difabrikasi di bengkel fabrikasi yang berbasis di Bandung, dengan menyerahkan gambar desain teknik yang telah dibuat sebelumnya. Pemilihan bahan stainless steel 316 dikarenakan penelitian ini akan berlangsung pada suhu 700°C , sehingga dibutuhkan material yang mempunyai titik leleh di atas suhu tersebut. Stainless steel 316 diketahui mempunyai titik leleh $1370\text{--}1400^{\circ}\text{C}$. Selain titik lelehnya yang tinggi, stainless steel 316 juga diketahui hanya bisa terengkah pada suhu 1000°C [33], sehingga tidak akan terjadi reaksi di permukaan reaktor dengan suhu yang digunakan selama penelitian. Stainless steel 316 merupakan material yang sesuai yang bisa didapatkan dengan harga yang lebih murah daripada material reaktor lain seperti kuarsa. Diameter dan panjang reaktor disesuaikan dengan ukuran *furnace* yang akan digunakan selama penelitian. *Furnace* yang digunakan memiliki ukuran seperti pada Gambar 4.1 berikut:

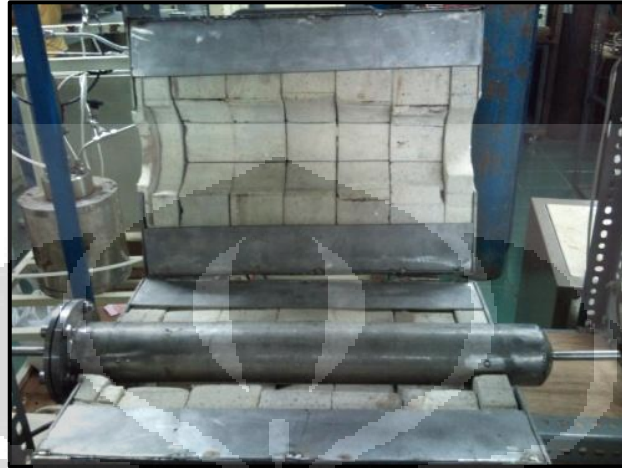


Gambar 4. 1Ukuran *furnace* penelitian

Gambar 4.2 dan 4.3 merupakan gambar realisasi dari hasil perancangan reaktor, dan reaktor setelah diletakkan pada *furnace*.



Gambar 4.2Reaktor dan *furnace* setelah fabrikasi



Gambar 4.3Reaktor dan *furnace*

Pada bagian ujung kiri dan kanan reaktor dibuat dua buah celah untuk masukan umpan dan keluaran produk. Untuk ujung kiri reaktor dirancang tidak tertutup secara permanen, agar substrat katalis dapat dimasukkan dan dikeluarkan dengan mudah, tetapi reaktor dapat tetap tertutup erat dengan menggunakan beberapa baut yang dipasang. Selain itu juga terdapat celah untuk termokopel dan probe. Termokopel dipasang untuk mengetahui profil suhu yang terdapat di sepanjang reaktor ketika pemanasan untuk reaksi dekomposisi katalitik metana yang terjadi pada suhu 700°C . Pada celah termokopel digunakan silikon untuk mencegah adanya lubang yang dapat menyebabkan kebocoran atau keluarnya gas dari dalam reaktor ketika reaksi sedang berjalan. Celah untuk probe dibuat dengan diameter dan desain sama dengan termokopel. Probe yang digunakan sendiri pada bagian ujungnya tertutup oleh silikon sehingga tetap rapat namun dapat tetap dapat diambil sampel gasnya dengan menggunakan syringe GC, sehingga nantinya didapat profil konsentrasi di dalam reaktor.

Rangkaian peralatan pada penelitian juga terdiri dari tabung gas, *flowmeter*, serta gas chromatography seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.4 berikut.

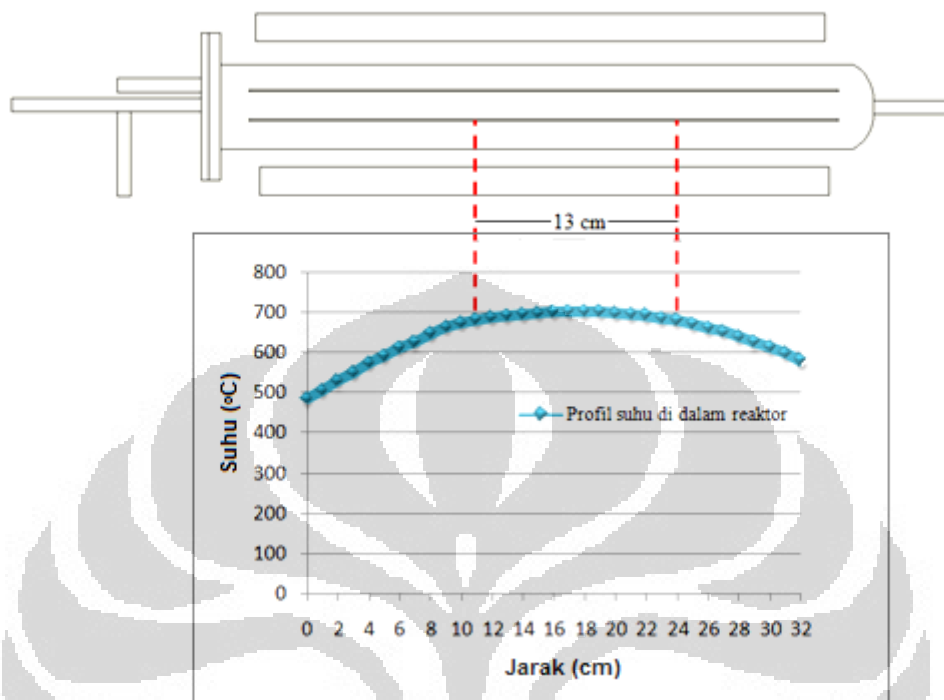


Gambar 4.4 Rangkaian peralatan penelitian

Tabung gas yang mempunyai *main valve* dan *pressure regulator* disambungkan dengan *flowmeter* yang juga tersambung dengan reaktor yang berada di dalam *furnace*. Aliran output dari reaktor dihubungkan ke *gas sampler*. Dari gas sampler dapat diatur agar output dialirkan ke *Gas Chromatography* untuk mengetahui peak area dari setiap gas yang terkandung. Jika tidak dialirkan ke *Gas Chromatography*, maka gas akan mengalir menuju *vent* yang berarti gas terbuang ke luar laboratorium dengan aman. Selain peralatan tersebut juga terdapat *bubble soap* yang pada waktu-waktu tertentu dihubungkan ke *vent* untuk mengetahui laju alir keluaran dari reaktor.

4.2 Uji Panjang Efektif Reaktor

Untuk mengetahui posisi di dalam reaktor di mana distribusi suhu hampir seragam, perlu dilakukan uji panjang efektif reaktor. Panjang efektif reaktor dapat diketahui dengan mengukur suhu sepanjang reaktor yang terpanasi oleh *furnace* saat terjadi reaksi dengan menggunakan termokopel. Pelat diletakkan di sepanjang reaktor yang berbatasan dengan , dan pengukuran suhu dilakukan setiap 1 cm sepanjang reaktor. Profil suhu yang didapatkan terdapat pada Gambar 4.5 berikut:



Gambar 4.5 Profil suhu dalam reaktor

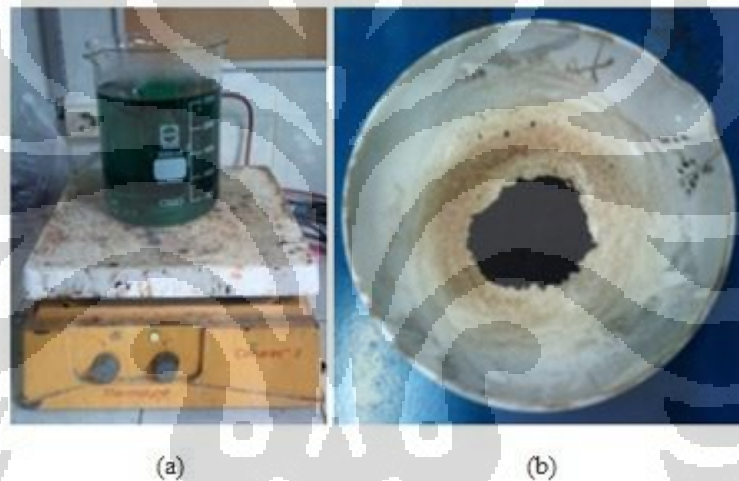
Pengukuran panjang efektif dilakukan sepanjang 32 cm, di mana posisi 0 cm terletak 4,25 cm dari ujung kiri *furnace* dan posisi 32 cm terletak 4,25 cm dari ujung kanan *furnace*. Dengan melakukan uji panjang efektif ini, didapatkan panjang efektif reaktor sekitar 13 cm, yang posisinya di tengah *furnace* seperti yang terlihat pada gambar profil suhu di atas. Maka dengan hasil uji panjang ini dapat diperkirakan bahwa reaksi dekomposisi katalitik metana akan efektif terjadi pada 15,25 cm dari ujung kiri *furnace* sampai 12,25 cm dari ujung kanan *furnace*. Kisaran suhu untuk daerah panjang efektif ini adalah sebesar 680-702 °C

4.3 Preparasi Dan Karakterisasi Katalis

Katalis yang digunakan dalam penelitian ini adalah katalis Ni-Cu-Al. Preparasi katalis dilakukan dengan menggunakan metode *sol-gel*. Alasan digunakannya metode *sol-gel* adalah karena metode ini menghasilkan stabilitas termal, tahanan pelarut, dan stabilitas mekanik yang tinggi. Kebutuhan prekursor nitrat untuk preparasi katalis sebelumnya dihitung secara stoikiometrik agar mencapai komposisi katalis Ni-Cu-Al sebesar 2:1:1. Komposisi tersebut

didapatkan berdasarkan penelitian Chen pada tahun 2001 yang mengatakan bahwa komposisi katalis terbaik untuk katalis Ni-Cu-Al adalah sebesar 2:1:1, sehingga dihasilkan jumlah karbon dan kualitas karbon yang baik.

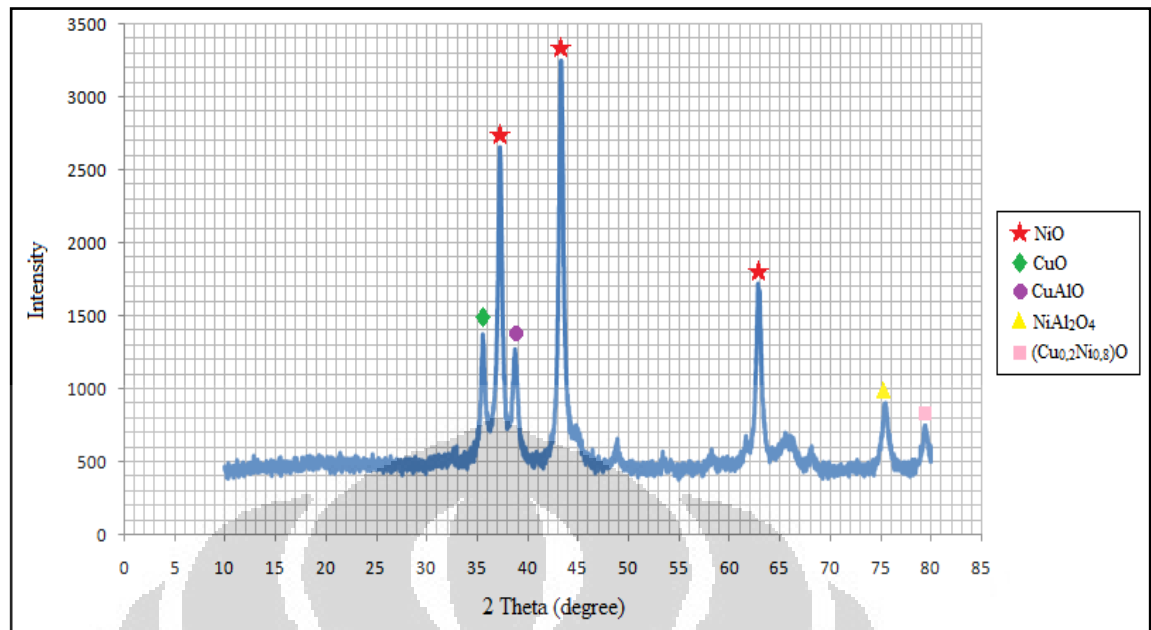
Pertama-tama dilakukan pelarutan $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, dan $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ke dalam air deionisasi untuk melarutkan garam-garam nitrat ke dalam air. Setelah itu ditambahkan asam sitrat yang jumlahnya juga sudah dihitung secara stoikiometrik. Untuk melarutkan asam sitrat, $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, dan $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, digunakan *hot plate* dengan suhu 80°C dan *magnetic stirrer* untuk mempercepat pelarutan. Proses pelarutan tersebut dilakukan selama 1 jam. Gambar 4.6 berikut merupakan gambar dari proses pelarutan katalis dengan *hot-plate*, dan hasil katalis setelah dikalsinasi.



Gambar 4. 6(a) Pelarutan katalis Ni-Cu-Al dengan *hot plate* dan
(b) katalis setelah dikalsinasi

Dari larutan yang telah dibuat, diambil sebagian kecil sebagai sampel untuk karakterisasi katalis. Sebagian larutan tersebut dikalsinasi di dalam *furnace* dengan suhu 700°C selama 1 jam, selanjutnya dihaluskan sampai menjadi bentuk serbuk. Gambar berikut ini menunjukkan kondisi katalis sebelum dan sesudah dilakukan kalsinasi.

Katalis yang sudah terbentuk selanjutnya dikarakterisasi XRD untuk mengetahui jenis senyawa yang terbentuk. Hasil XRD dari katalis Ni-Cu-Al terdapat pada Gambar 4.7 dan Tabel 4.1.



Gambar 4.7 Hasil XRD katalis Ni-Cu-Al

Tabel 4.1 Senyawa-senyawa yang terdeteksi pada katalis Ni-Cu-Al

Sudut 2 Theta (derajat)	Senyawa
35,58	CuO
37,28	NiO
38,76	CuAlO
43,32	NiO
62,86	NiO
75,36	NiAl ₂ O ₄
79,34	(Cu _{0,2} Ni _{0,8})O

Dari hasil XRD terlihat bahwa dari katalis terdeteksi dua senyawa yang memiliki intensitas tertinggi, yaitu NiO dan CuO. Senyawa-senyawa lain yang terdeteksi dengan intensitas yang lebih kecil adalah CuAlO, NiAl₂O₄, dan (Cu_{0,2}Ni_{0,8})O. Seharusnya juga terdapat senyawa Al₂O₃ di dalam katalis, namun tidak dapat dideteksi karena senyawa Al₂O₃ memiliki angle ($^{\circ}2\theta$) yang lebih besar dari 80 $^{\circ}$.

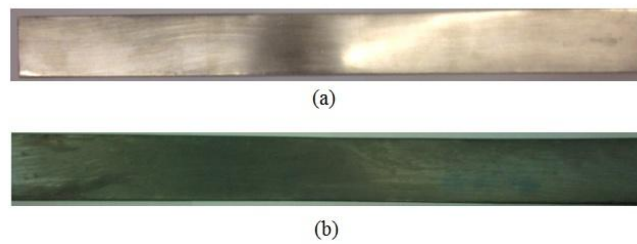
4.4 Pelapisan Katalis Pada Pelat Sejajar

Pada penelitian ini digunakan pelat sejajar sebagai substrat katalis, dan pelapisan katalis digunakan dengan metode *dip-coating*. Sebelum dilakukan pelapisan katalis, pelat *stainless steel* terlebih dahulu diampas agar permukaannya lebih kasar, lalu selanjutnya pelat direndam di dalam aseton selama

30 menit untuk menghilangkan pengotor yang menempel pada pelat. Selain diampas, untuk mengkasarkan permukaan juga dilakukan pencelupan pelat ke dalam larutan asam nitrat 4 M selama 30 menit setelah perendaman di dalam aseton. Tujuan pengkasaran permukaan pelat adalah agar larutan katalis lebih menempel pada permukaan pelat. Setelah itu pelat dikeringkan untuk menghilangkan kandungan larutan asam dan aseton. Pelat yang sudah kering selanjutnya ditimbang untuk mengetahui berat awal pelat (W_0).

Pelat yang sudah siap dan sudah ditimbang selanjutnya dicelupkan ke dalam wadah yang sudah berisi larutan *sol-gel* katalis sampai terendam sempurna. Pelat dicelup selama 30 menit, lalu diangkat dengan kecepatan konstan 1 mm/detik dengan menggunakan *integrator*. Kecepatan pengangkatan yang konstan dilakukan agar larutan katalis terlapis merata pada permukaan pelat. Setelah diangkat akan terlihat bahwa terbentuk lapisan film tipis pada permukaan pelat, yang menandakan bahwa katalis menempel pada permukaan katalis. Pelat diangkat dan dikeringkan di udara selama 15 menit untuk meluruhkan sisa larutan katalis yang masih menumpuk tidak rata di pinggiran pelat. Setelah itu pelat dikeringkan didalam *digital furnace* dengan suhu 130°C selama 1 jam untuk menghilangkan kandungan air yang terdapat pada lapisan film tersebut. Pelat yang sudah dikeringkan selanjutnya ditimbang untuk mengetahui W_1 , yaitu berat pelat ditambah *loading* katalis setelah *dip-coating*. Selanjutnya prosedur *dip-coating* kembali dilakukan sampai *loading* katalis dianggap maksimal dan sudah tidak ada kenaikan berat secara signifikan. Pada kenyataannya pada penelitian ini *dip-coating* dilakukan sebanyak tiga kali sehingga pada akhirnya didapatkan W_1 , W_2 , dan W_3 .

Substrat katalis yang sudah memiliki *loading* yang maksimal selanjutnya dikalsinasi. Kalsinasi dilakukan untuk menjaga lapisan katalis yang telah terbentuk pada pelat agar lebih kuat, tidak rontok, dan struktur morfologinya stabil dan tidak berubah walaupun tidak langsung digunakan. Kalsinasi katalis dilakukan pada suhu 700°C dengan menggunakan *digital furnace*. Gambar 4.8 berikut merupakan kondisi pelat sebelum dan sesudah kalsinasi dilakukan



Gambar 4.8 Kondisi pelat (a) sebelum kalsinasi dan (b) sesudah kalsinasi

Setelah dilakukan kalsinasi, pelat kembali ditimbang untuk mengetahui berat akhir setelah pelapisan katalis yaitu W_4 . Jika dilihat dari hasil timbangan setiap pelat, terlihat bahwa W_4 lebih kecil dari W_3 yang berarti masih ada sisa air yang diuapkan atau ada sejumlah katalis yang rontok. Namun berat akhir tersebut masih lebih besar dari berat awal, sehingga didapatkan sejumlah berat katalis yang menempel di pelat.

4.5 Uji Kinerja Reaktor Untuk Reaksi Dekomposisi Katalitik Metana

Ketika seluruh peralatan penelitian telah selesai diset-up dan siap untuk digunakan, katalis pelat yang telah dikalsinasi selanjutnya dimasukkan ke dalam reaktor. Setelah itu reaktor dialirkan nitrogen pada suhu ruang untuk melakukan uji kebocoran dan memberikan kondisi inert terhadap reaktor. Ketika sudah dipastikan tidak ada kebocoran pada reaktor, aliran nitrogen dihentikan, dan suhu *furnace* dinaikkan sampai suhu di dalam reaktor sebesar 700°C . Pada suhu 700°C , reaktor dialirkan gas hidrogen. Pengaliran hidrogen bertujuan untuk mereduksi oksida logam pada katalis. Reduksi katalis dilakukan selama 30 menit. Setelah reduksi selesai dan sudah tidak ada lagi aliran hidrogen di dalam reaktor, selanjutnya dilakukan pengaliran gas umpan metana. Metana dialirkan dengan laju alir berdasarkan *space time* yang digunakan. Reaksi dekomposisi metana dilakukan selama 5 jam, dengan pengambilan data melalui *Gas Chromatography* (GC) sebanyak 14 kali. Pengambilan data dilakukan setiap 10 menit untuk 1 jam pertama, dan setiap 30 menit untuk jam-jam selanjutnya sampai jam ke-5. Selain pengambilan data dengan menggunakan GC, juga dilakukan pengambilan data laju alir keluaran reaktor dengan menggunakan *bubble soap*.

Uji kinerja reaktor katalis terstruktur pelat ini dilakukan dengan variasi spacetime pada suhu yang tetap, yaitu 700°C . Alasan penggunaan suhu 700°C

adalah dikarenakan suhu tersebut merupakan suhu yang optimal untuk reaksi dekomposisi katalitik metana. Variasi *space time* yang digunakan adalah 0,0006, 0,0032, dan 0,006 gr min/mL. Berat dari konfigurasi pelat yang digunakan untuk setiap variasi terdapat pada Tabel 4.2.

Tabel 4.2 Konfigurasi pelat yang digunakan pada penelitian

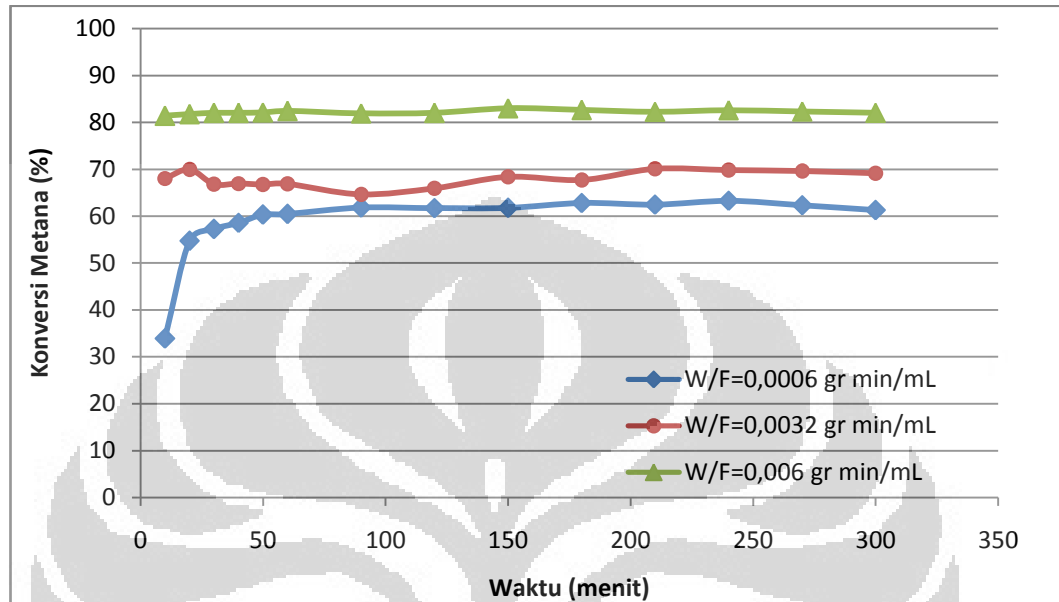
	W/F (gr min/mL)		
	0,0006	0,0032	0,006
W_0 (g)	228,29	231,94	242,51
W_1 (g)	228,5	232,12	242,64
W_2 (g)	228,53	232,32	242,97
W_3 (g)	228,45	232,15	242,75
T kalsinasi	700	700	700
W_4 (g)	228,35	232,1	241,65
$W_4 - W_0$ (g)	0,06	0,16	0,12
A pelat (cm ²)	588	588	588
W/A (g/cm ² pelat)	0,000102	0,000272	0,000204
F (ml/min)	100	50	20

Di mana W_0 adalah berat pelat awal, W_1 adalah berat pelat setelah dilapisi katalis setelah *dip-coating* dan pengeringan pertama, W_2 adalah berat pelat setelah dilapisi katalis setelah *dip-coating* dan pengeringan kedua, W_3 adalah berat pelat setelah dilapisi katalis setelah *dip-coating* dan pengeringan ketiga, W_4 adalah berat pelat setelah kalsinasi. Dengan W/F yang telah ditentukan, maka didapat besarnya laju alir yang digunakan.

4.5.1 Konversi Metana

Ketika metana mulai dialirkan ke dalam reaktor, dilakukan pengambilan data dengan menggunakan Gas Chromatography pada waktu-waktu tertentu untuk mengetahui seberapa besar konversi metana pada setiap waktu tersebut. Konversi metana menunjukkan persentase metana yang terkonversi baik menjadi produk utama reaksi dekomposisi katalitik metana ini, yaitu hidrogen dan karbon, maupun produk sampingan jika terbentuk, yaitu karbon monoksida dan karbon

dioksida. Konversi metana didapatkan dari pembagian antara selisih mol metana masuk dengan mol metana keluar terhadap mol metana masuk. Gambar 4.9 menunjukkan hasil konversi metana terhadap waktu sepanjang 5 jam reaksi untuk setiap variasi spacetime yang digunakan.

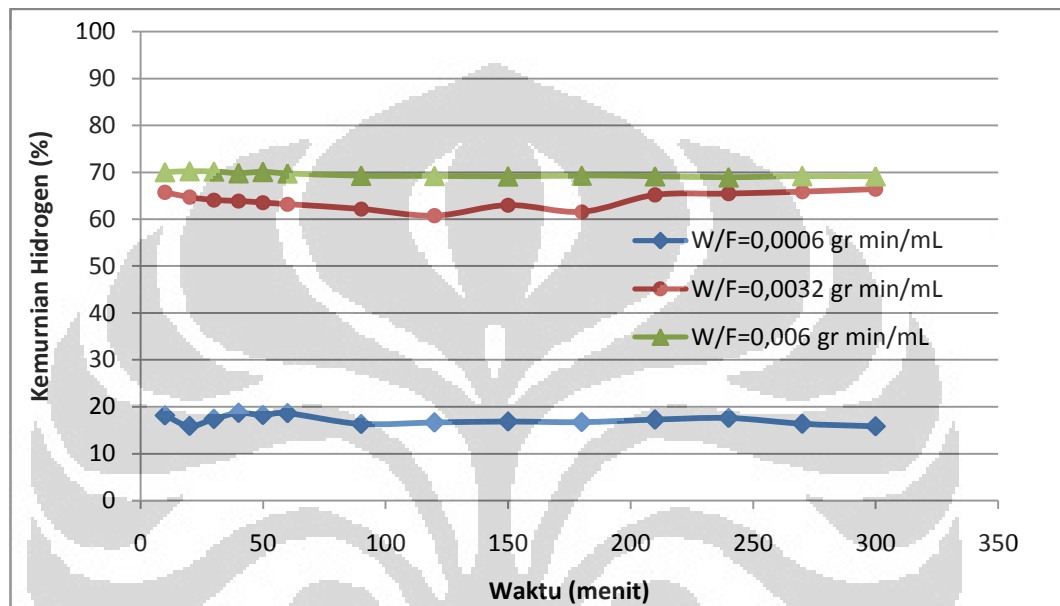


Gambar 4.9 Profil konversi metana terhadap waktu untuk suhu reaksi 700°C

Pada pengujian dengan spacetime 0,0006 didapatkan bahwa konversi metana tertinggi adalah 63,26% dan konversi rata-ratanya adalah 58,74%. Untuk pengujian dengan spacetime 0,0032 didapatkan bahwa konversi metana tertinggi adalah 70,07% dan konversi rata-ratanya adalah 67,90%. Sedangkan pengujian dengan spacetime 0,006 didapatkan bahwa konversi metana tertinggi adalah 83,01% dan konversi rata-ratanya adalah 82,17%. Dari hasil konversi metana yang didapatkan, dapat dilihat bahwa dengan spacetime 0,006 didapatkan konversi yang paling tinggi. Hasil konversi metana pada *space time* 0,006 paling mendekati konversi kesetimbangan reaksi dekomposisi metana pada suhu 700°C, yaitu sebesar 92%. Selain itu dapat dilihat pula bahwa selama 5 jam reaksi, belum terdapat penurunan konversi yang signifikan, sehingga berarti katalis pelat masih bersifat aktif dan belum terdeaktivasi secara signifikan dengan adanya deposit karbon yang dihasilkan. Maka diduga reaksi dekomposisi metana masih bisa berjalan dengan baik setelah 5 jam tersebut.

4.5.2 Kemurnian Hidrogen

Kemurnian hidrogen merupakan rasio volume hidrogen keluar terhadap volume total keluaran reaktor. Kemurnian hidrogen juga menentukan banyaknya hidrogen yang terbentuk pada reaksi dekomposisi metana pada penelitian ini. Gambar 4.10 berikut merupakan kemurnian hidrogen yang dihasilkan untuk setiap reaksi dekomposisi metana dengan variasi spacetime yang digunakan.

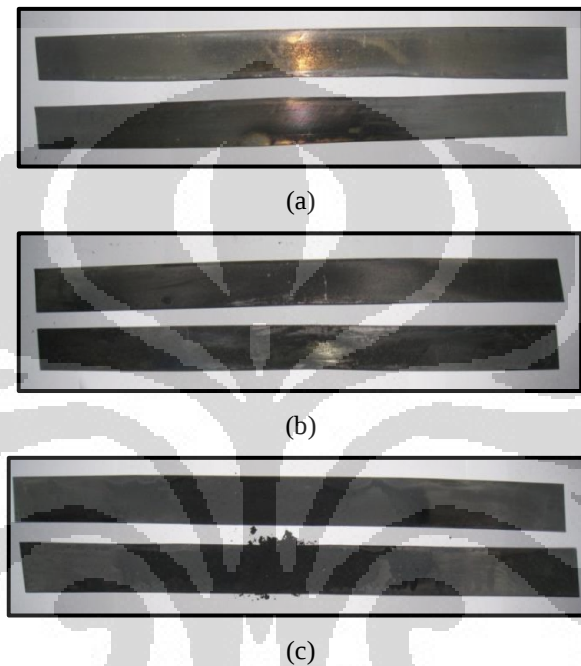


Gambar 4.10 Profil kemurnian hidrogen terhadap waktu untuk suhu reaksi 700°C

Pada pengujian dengan spacetime 0,0006 didapatkan bahwa kemurnian hidrogen tertinggi adalah 18,66% dan rata-ratanya adalah 17,17%. Untuk pengujian dengan spacetime 0,0032 didapatkan bahwa kemurnian hidrogen tertinggi adalah 66,38% dan rata-ratanya adalah 63,96%. Sedangkan pengujian dengan spacetime 0,006 didapatkan bahwa kemurnian hidrogen tertinggi adalah 70,17% dan rata-ratanya adalah 69,52%. Dari hasil kemurnian hidrogen yang didapatkan, dapat dilihat bahwa dengan spacetime 0,006 didapatkan hasil kemurnian hidrogen yang lebih tinggi dibanding dua variasi yang lebih kecil. Hal ini dapat dikarenakan konversi metana yang terjadi pada spacetime tersebut juga lebih besar dibanding spacetime 0,0032 dan 0,0006.

4.5.3 Yield Karbon

Yield karbon adalah banyaknya karbon yang terbentuk setelah reaksi per berat katalis yang digunakan. Setelah reaksi dekomposisi metana dihentikan, reaktor dibuka dan pelat kembali ditimbang untuk mengetahui *yield* karbon dari reaksi tersebut. Gambar 4.11 Berikut merupakan kondisi pelat setelah selesai reaksi dekomposisi metana.

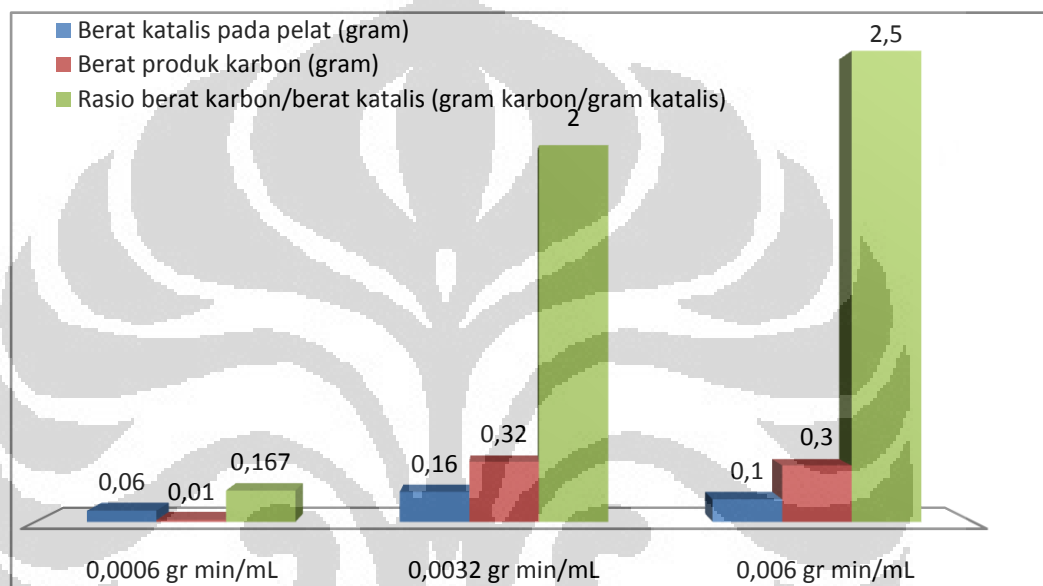


Gambar 4.11 Pelat sesudah reaksi dekomposisi katalitik metana pada 700°C untuk *space-time* (a) 0,0006 gr min/mL; (b) 0,0032 gr min/mL; (c) 0,006 gr min/mL

Hasil penelitian menunjukkan bahwa untuk waktu proses yang sama yaitu 5 jam, *yield* karbon paling besar terjadi pada spacetime terbesar yaitu 0,006. Hal ini dikarenakan konversi metana pada spacetime tersebut merupakan paling besar, sehingga banyaknya metana yang terkonversi menjadi karbon pun lebih besar dibanding dua variasi lainnya.

Jika dilihat dari gambar pelat setelah reaksi dekomposisi metana dihentikan, karbon paling banyak terdeposisi di bagian tengah dari pelat. Untuk bagian ujung kiri dan kanan pelat terlihat lebih sedikit terdeposisi. Hal ini terjadi karena suhu pada ujung-ujung reaktor yang lebih kecil daripada suhu yang diatur, seperti yang dapat dilihat pada profil temperatur sepanjang reaktor pada Gambar 4.5. Gradien suhu yang tersebut dapat dikarenakan pengaruh suhu lingkungan

yang mempengaruhi suhu di ujung-ujung reaktor. Dengan suhu yang lebih kecil tersebut membuat konversi reaksi pada ujung-ujung reaktor tidak maksimal dan *yield* karbon jauh lebih sedikit dibandingkan bagian tengah reaktor. Melihat profil konversi metana untuk 5 jam masih terlihat stabil dan belum ada penurunan konversi yang sangat signifikan, bisa jadi jika reaksi diperpanjang masih akan ada karbon yang terbentuk. Perbandingan *yield* karbon dari setiap reaksi terdapat pada Gambar 4.12.

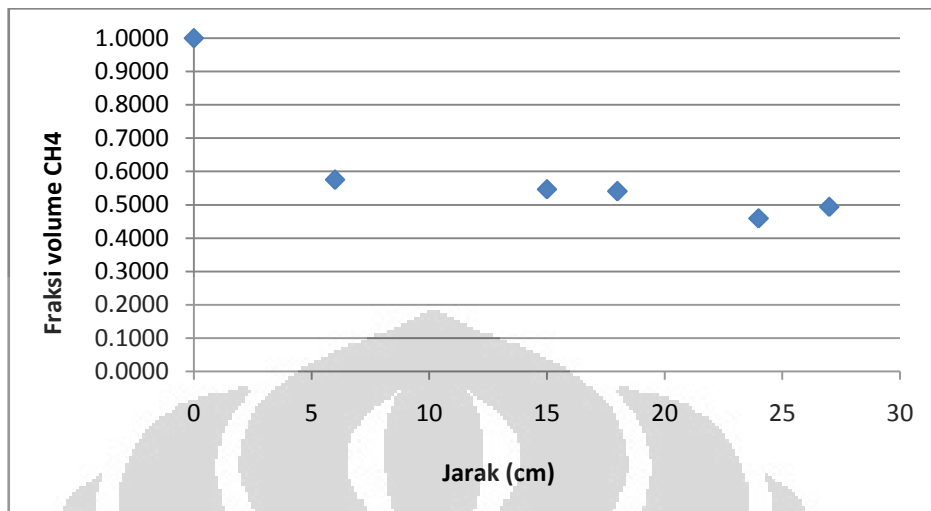


Gambar 4.12 Perbandingan *yield* karbon untuk suhu reaksi 700°C

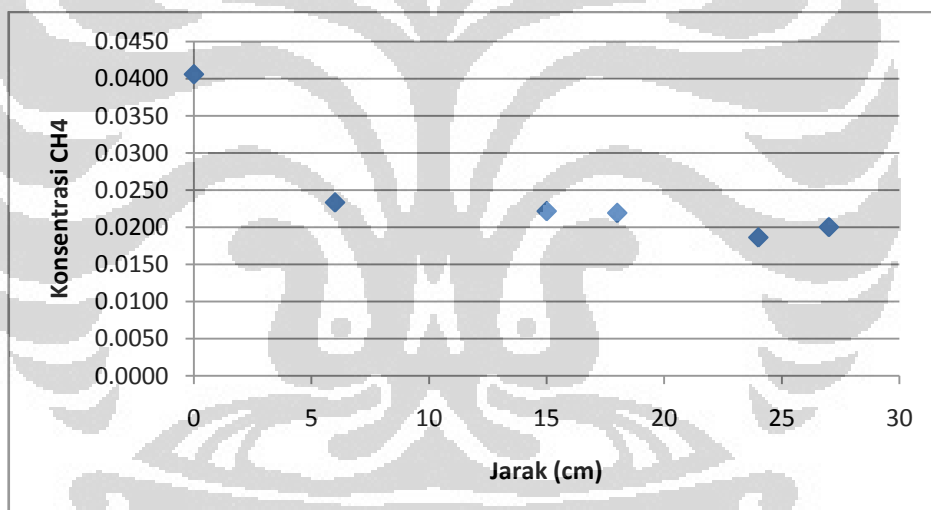
4.6 Profil Konsentrasi untuk Space-Time 0,006 gr min/mL

Pada kinerja *space time* terbaik, dilakukan pengambilan sampel gas pada lima titik yang berbeda di sepanjang reaktor pada jam ketiga reaksi, titik di mana konversinya termasuk paling tinggi. Probe sampel gas digeser sesuai titik yang diinginkan, dan pengambilan gas dilakukan menggunakan *syringe* gas, lalu gas disuntikkan ke Gas Chromatography, yang akan mengeluarkan data peak area dari setiap senyawa yang terdeteksi. Dari data *peak area*, didapatkan fraksi volume dari gas yang terdeteksi. Lalu dengan tambahan data volume gas didapatkan konsentrasi dari gas yang terdeteksi. Selain pengambilan sampel gas, juga dilakukan pengambilan data temperatur di lima titik tersebut dengan

menggunakan termokopel. Profil fraksi volume dan konsentrasi metana dapat dilihat pada Gambar 4.13.



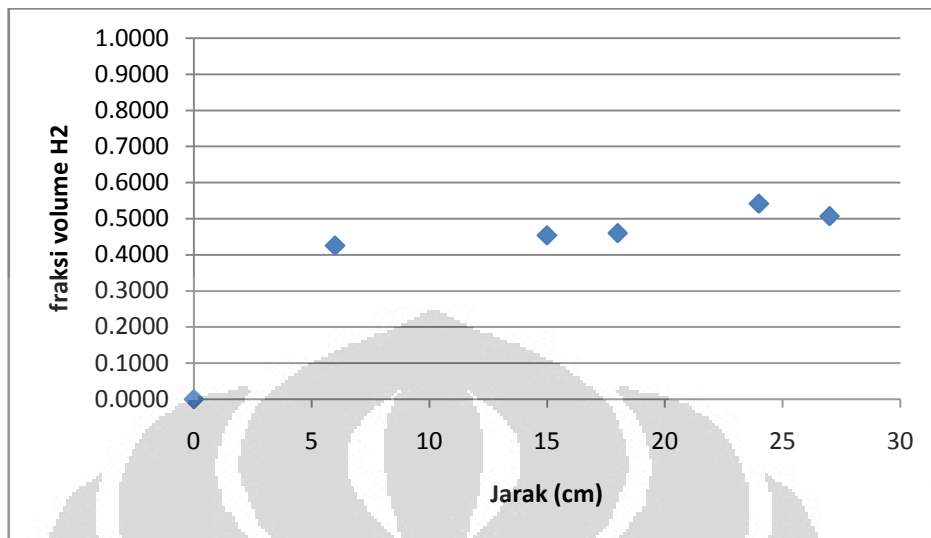
Gambar 4.13 Profil %volume CH₄ di dalam reaktor



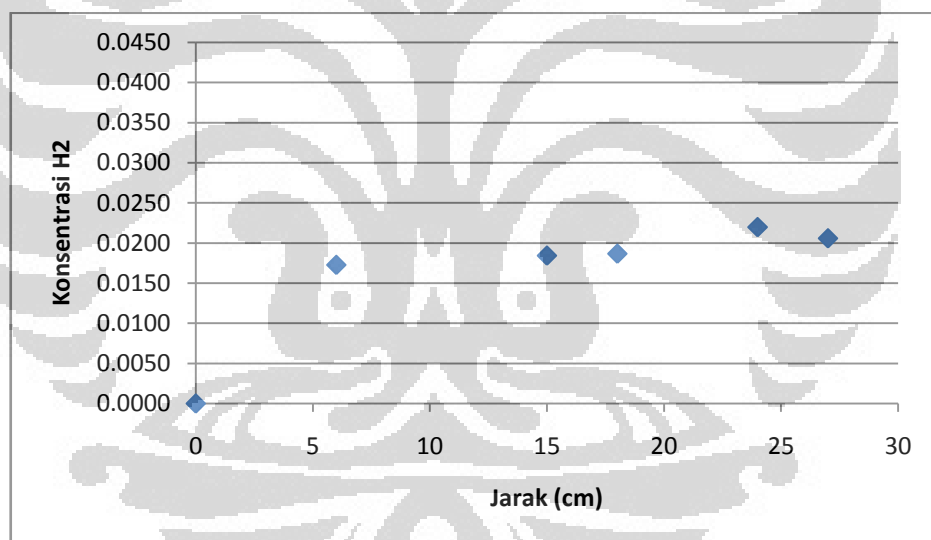
Gambar 4.14 Profil konsentrasi CH₄ di dalam reaktor

Jika dilihat pada Gambar 4.13 dan 4.14, fraksi volume dan konsentrasi metana di dalam reaktor semakin berkurang seiring mengalirnya gas ke bagian *outlet*. Pada titik nol, fraksi volume metana masih bernilai satu, dikarenakan gas yang masuk ke dalam reaktor merupakan metana murni. Ketika metana mengalir di dalam reaktor, metana akan bereaksi dengan katalis Ni-Cu-Al pada pelat, sehingga konsentrasi metana akan semakin berkurang karena sudah terkonversi menjadi produk dekomposisi metana berupa hidrogen dan karbon.

Untuk profil fraksi volume dan konsentrasi hidrogen di dalam reaktor terlihat pada Gambar 4.15 dan 4.16 berikut.



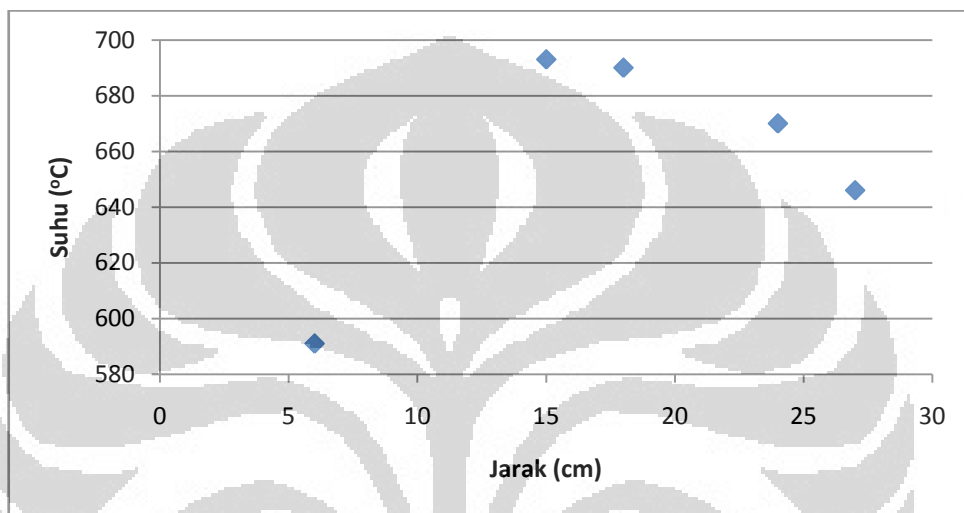
Gambar 4.15 Profil %volume H₂ di dalam reaktor



Gambar 4.16 Profil konsentrasi H₂ di dalam reaktor

Dapat dilihat bahwa fraksi volume dan konsentrasi hidrogen berbanding terbalik dengan profil fraksi volume dan konsentrasi metana. Pada titik nol masih tidak ada hidrogen dikarenakan gas umpan hanyalah gas metana, dan belum bereaksi dengan katalis sehingga belum dihasilkan hidrogen. Namun seiring berjalannya reaksi, metana akan terkonversi dan salah satu produknya adalah hidrogen. Maka jumlahnya akan semakin besar seiring mengalirnya gas ke bagian outlet gas reaktor.

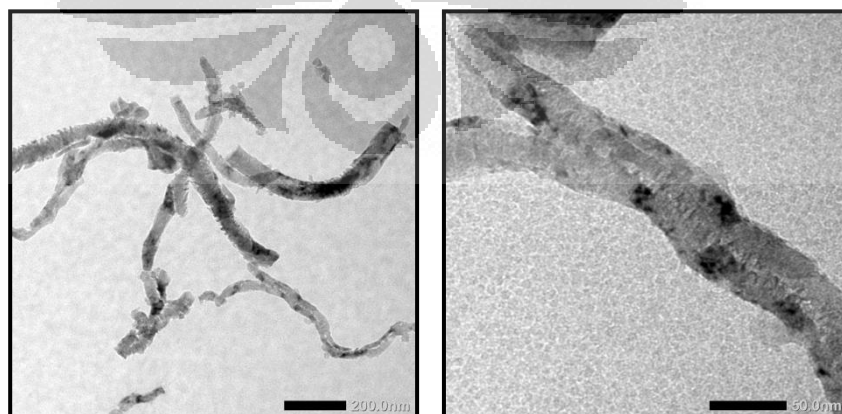
Selain profil konsentrasi dan fraksi volume, juga didapatkan profil temperatur yang terdapat pada Gambar 4.17. Dapat dilihat bahwa profil temperatur yang didapat sedikit lebih rendah dibandingkan profil temperatur yang diambil pada saat reaktor kosong tanpa katalis. Hal ini dikarenakan reaksi dekomposisi katalitik metana berjalan secara endotermis dan membutuhkan panas. Banyaknya energi yang dikonsumsi agar reaksi berjalan membuat panas terserap dan suhu menurun.



Gambar 4.17 Profil suhu sepanjang reaktor saat reaksi dekomposisi metana berjalan

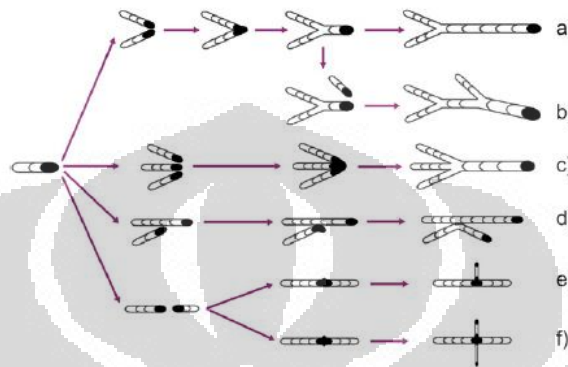
4.7 Deposit Karbon untuk Space-Time 0,006 gr min/mL

Untuk menganalisis deposit karbon yang dihasilkan, dilakukan karakterisasi *Transmission Electron Microscopy* (TEM) dan *X-Ray Diffraction* (XRD) yang hasilnya terdapat pada Gambar 4.18 dan Gambar 4.19.



Gambar 4.18 Hasil karakterisasi TEM untuk reaksi dekomposisi katalitik metana selama 5 jam pada suhu 700°C, tekanan 1 atm, *space time* 0,006 gr min/mL

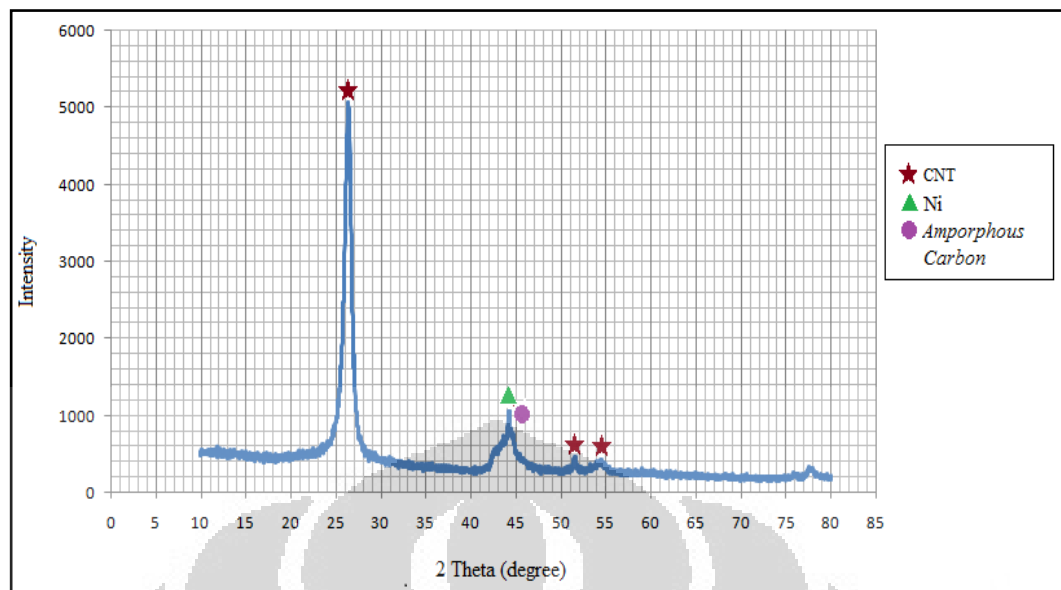
Dari hasil TEM dapat dilihat bahwa pada penelitian ini dengan suhu 700°C dihasilkan *carbon nanotube* dengan bentuk *Y-junction*. Diameter dalam yang didapatkan adalah sebesar 7,5 – 15 nm dan diameter luar sebesar 37,5 – 85 nm. Saat ini masih sedikit peneliti yang meneliti atau ingin mendapatkan CNT jenis *Y-junction*. Mekanisme pertumbuhannya dapat dijelaskan seperti pada Gambar 4.14.



Gambar 4. 19Proses pertumbuhan beberapa CNT junctions (a) Y-junction CNT; (b) multi-level Y-junction CNT; (c) multi-terminal Y-junction CNT; (d) L-junction CNT; (e) needle-like branched T-junction CNT; (f) four-terminal crossed-junction CNT [34]

Ketika dua partikel katalis bertemu satu sama lain dalam pergerakannya, bisa jadi keduanya menyatu satu sama lain untuk membentuk partikel katalis yang lebih besar, yang bisa mengkatalisasi pertumbuhan cabang ketiga CNT. Hal inilah yang terjadi pada penelitian ini. Apabila partikel yang saling melekat tersebut terus bergerak dan bertemu dengan partikel katalis ketiga pada batang CNT yang lain, maka akan terbentuk gumpalan partikel katalis lain kedua yang akan mengkatalisasi pertumbuhan Y-junction yang kedua sehingga terbentuk *multilevel junction* CNT. Namun apabila tiga atau lebih partikel katalis yang bertemu pada titik yang sama, akan menghasilkan *multi-terminal junction*, yang probabilitas munculnya jauh lebih kecil dan tidak terjadi pada penelitian ini[34].

Untuk menguatkan hasil TEM mengenai keberadaan CNT, dilakukan analisis XRD yang hasilnya didapatkan pada Gambar 4.20.

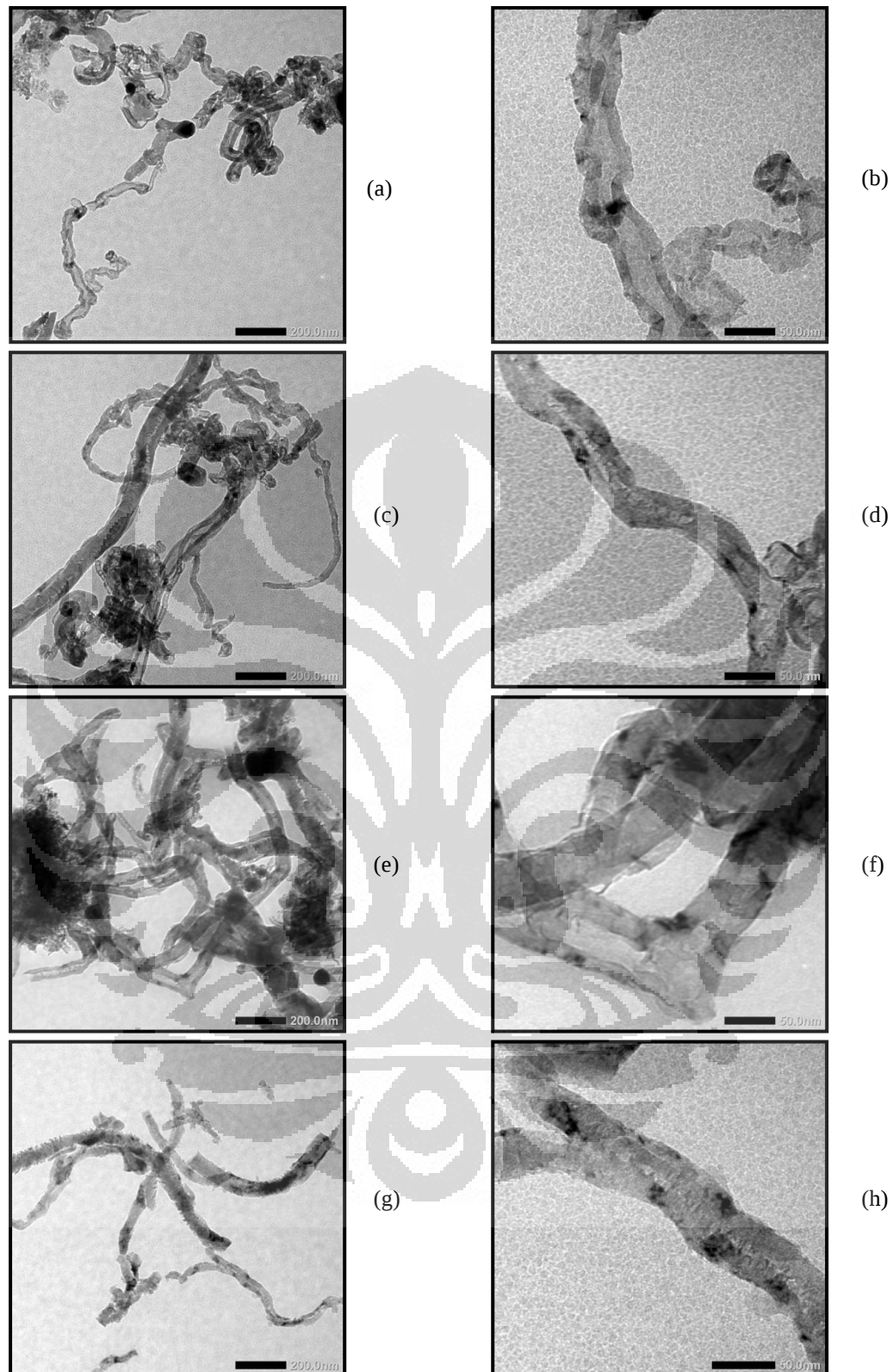


Gambar 4.20 Hasil XRD CNT untuk reaksi pada suhu 700°C dan space-time 0,006 gr min/mL

Dapat dilihat dari hasil XRD bahwa di antara peak-peak terkuat terdapat tiga peak yang menandai adanya CNT yaitu pada sebesar 26,3405; 51,25; dan 54,5. Hal ini berarti karbon yang terdeteksi merupakan *carbon nanotube*. Kemudian juga terdapat 2 peak berhimpit yaitu nikel dengan nilai 2 theta 44,3 dan karbon amorf pada nilai 2 theta 45. Hal ini sesuai dengan gambar TEM yang memperlihatkan masih ada partikel katalis yang bercampur dengan CNT. Peak CNT yang didapatkan juga merupakan peak dengan intensitas tertinggi di antara senyawa lainnya, yang berarti jumlahnya lebih banyak dibandingkan senyawa yang lain.

4.8 Hasil Kualitas Carbon Nanotube terhadap Waktu Reaksi

Untuk mendapatkan waktu reaksi yang menghasilkan kualitas CNT terbaik, pada penelitian ini juga dilakukan variasi waktu reaksi dekomposisi katalitik metana selain 5 jam reaksi, yaitu 20 menit, 1 jam, dan 2 jam. Kondisi operasi yang digunakan sama untuk setiap variasi, yaitu suhu 700°C, tekanan atmosfer, dan *space time* 0,006 gr min/mL. Setelah reaksi dihentikan, sampel diambil untuk dikarakterisasi dengan menggunakan TEM. Gambar berikut merupakan perbandingan hasil TEM dari setiap waktu reaksi.



Gambar 4.21 Hasil karakterisasi TEM untuk reaksi dekomposisi katalitik metana selama 20 menit (a dan b); 1 jam (c dan d); 2 jam (e dan f); dan 5 jam (g dan h) pada suhu 700°C, tekanan 1 atm, *space time* 0,006 gr min/mL

Untuk 20 menit reaksi, CNT yang dihasilkan memiliki diameter dalam 10-30 nm dan diameter luar 30-50 nm. Pada waktu reaksi ini terlihat bahwa CNT yang dihasilkan juga lebih bersih dari pengotor. Dapat dilihat pula masih terdapat inti aktif katalis yang belum membentuk CNT.

Untuk 1 jam reaksi, CNT yang dihasilkan memiliki diameter dalam 2,5-50 nm dan diameter luar 40-120 nm. Jika dibandingkan dengan waktu reaksi 20 menit, pada waktu reaksi 1 jam memiliki jumlah pengotor yang lebih banyak, pengotor terlihat pada black-spot pada gambar TEM. Pengotor yang dimaksud dapat berupa karbon lain yang bukan CNT, seperti karbon amorf yang merupakan karbon berkualitas rendah. Pengotornya juga bercampur katalis yang belum bereaksi.

Untuk 2 jam reaksi, CNT yang dihasilkan memiliki diameter dalam 10-30 nm dan diameter luar 20-75 nm. Pertumbuhan CNT yang dihasilkan juga lebih banyak dibandingkan sebelumnya, namun lebih banyak pengotor. Selain itu juga terlihat karbon yang terlihat akan membentuk CNT Y-Junction jika reaksi dilanjutkan.

Hasil 5 jam reaksi merupakan CNT dengan diameter dalam 7,5-15 nm dan diameter luar 37,5-85 nm. CNT yang dihasilkan merupakan CNT bercabang atau CNT Y-Junction, yang jika dilihat merupakan pertumbuhan lebih lanjut dari CNT yang terdapat pada waktu reaksi 2 jam.

Jika dilihat dari keseluruhan hasil TEM waktu reaksi yang berbeda-beda, CNT yang diinginkan pada penelitian ini adalah CNT pada waktu reaksi 20 menit, yang jumlah pengotornya jauh lebih sedikit dibandingkan waktu-waktu reaksi yang lebih panjang. Waktu reaksi yang semakin panjang memang akan menghasilkan lebih banyak karbon, namun semakin panjang reaksinya berjalan akan semakin banyak pengotor yang dihasilkan seperti karbon kualitas rendah, sehingga CNT yang dihasilkan semakin tidak murni. Dari 4 hasil TEM tersebut juga dapat dilihat bahwa untuk 5 jam reaksi, katalis yang digunakan pada penelitian ini masih sangat aktif untuk membentuk karbon. Dapat diambil contohnya adalah calon CNT Y-Junction yang muncul pada waktu reaksi 2 jam, dan berlanjut untuk membentuk CNT Y-Junction pada waktu reaksi 5 jam.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

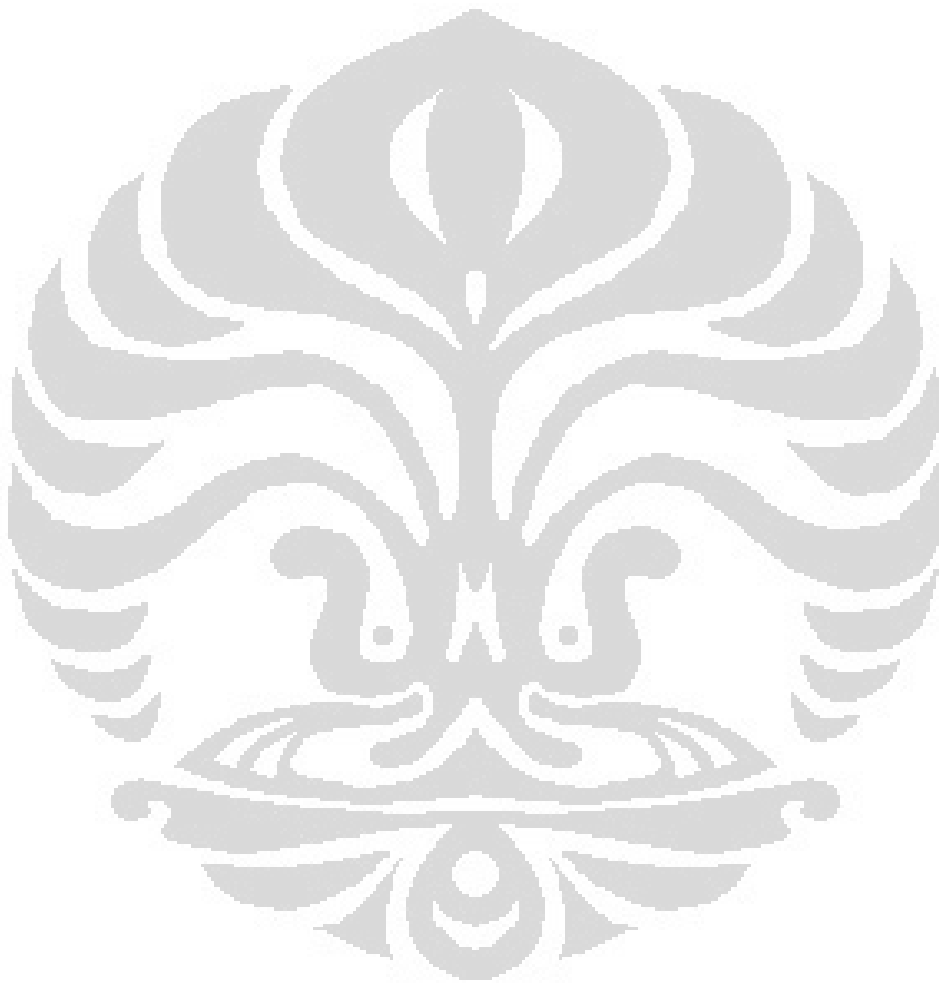
5.1 Kesimpulan

1. Pelapisan katalis Ni-Cu-Al pada pelat stainless steel dengan metode *dip-coating* menghasilkan *loading* yang berkisar dari 0,06-0,01 gram
2. Meningkatnya *space time* akan meningkatkan konversi reaksi. Pada *space time* 0,0006; 0,0032; dan 0,006 gr min/mL masing-masing dihasilkan konversi metana tertinggi 63,26%, 70,07%, dan 83,01%.
3. Meningkatnya *space time* akan meningkatkan kemurnian hidrogen. Pada *space time* 0,0006; 0,0032; dan 0,006 gr min/mL masing-masing dihasilkan kemurnian hidrogen tertinggi 18,66%, 66,38%, dan 70,17%.
4. Meningkatnya *space time* akan meningkatkan *yield* karbon. Untuk reaksi selama 5 jam, dihasilkan *yield* karbon sebesar 0,167 gr C/gr katalis untuk *space time* 0,0006 gr min/mL, 2 gr C/gr katalis untuk *space time* 0,0032 gr min/mL, dan 2,5 gr C/gr katalis untuk *space time* 0,006 gr min/mL.
5. Dari hasil TEM untuk kondisi operasi 700°C dan *space time* 0,006 gr min/mL, didapatkan *carbon nanotube* berbentuk Y-junction dengan ukuran diameter dalam 7,5 - 15 nm dan diameter luar 37,5 – 85 nm.
6. Seiring mengalirnya gas keluar reaktor, konsentrasi metana akan semakin kecil karena habis untuk bereaksi dengan katalis, sedangkan konsentrasi hidrogen akan semakin besar karena merupakan produk dari dekomposisi
7. Waktu reaksi dekomposisi katalitik metana selama 20 menit menghasilkan kualitas CNT terbaik dengan jumlah pengotor yang lebih sedikit dan diameter yang cukup kecil yaitu diameter dalam 10-30 nm dan diameter luar 30-50 nm

5.2 Saran

1. Mencoba metode pelapisan katalis lain, seperti metode spray-coating, untuk mendapatkan *loading* katalis yang lebih besar
2. Melakukan uji spacetime yang lebih tinggi untuk mengetahui kinerja reaktor untuk *space time* lebih dari 0,006 gr min/mL

3. Mengecilkan jarak antar pelat atau menambah jumlah pelat agar aliran panas di dalam reaktor lebih merata
4. Menambah waktu reaksi untuk mengetahui tren konversi lebih lanjut



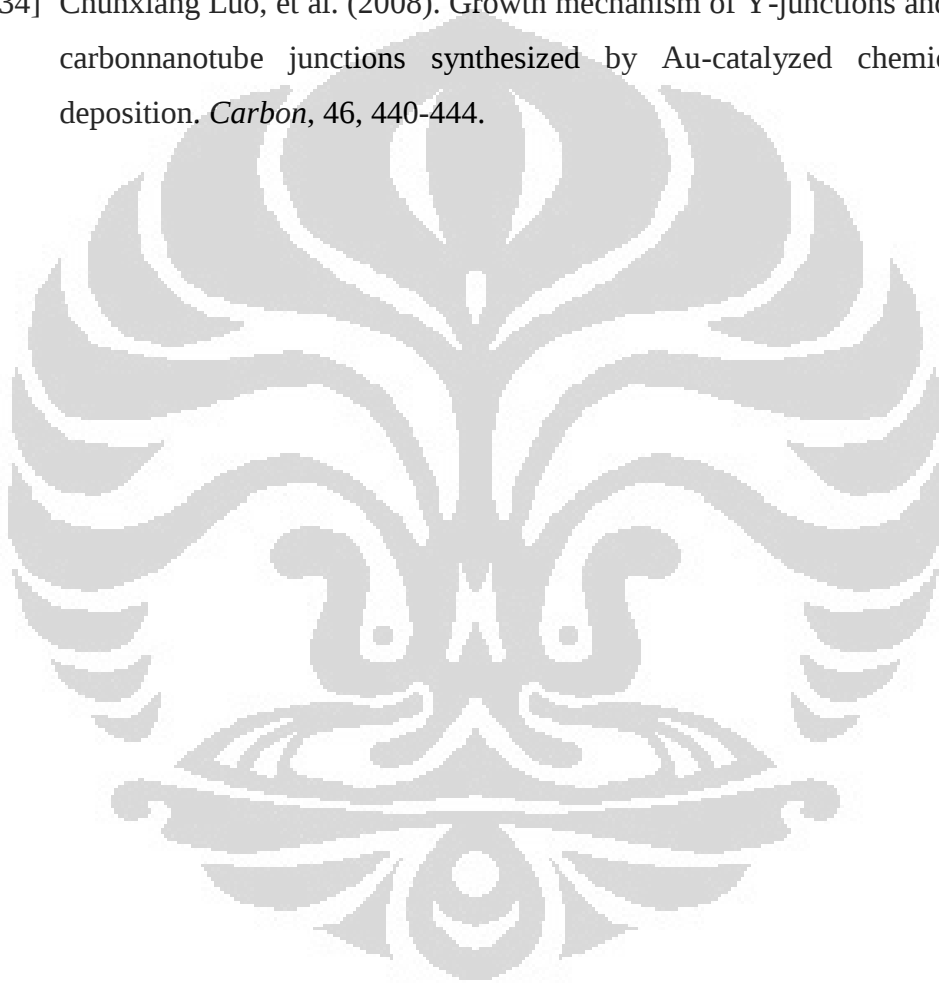
DAFTAR PUSTAKA

- [1] Cordier, A. E. (2005). In situ CCVD synthesis of carbon nanotubes within a commercial ceramic. *Journal of Materials Chemistry*, 4041–4050.
- [2] GrujicicG caoGersten, B. (2002). An atomic-scale analysis of catalitically-assisted chemical vapor deposition of carbon nanotubes. *Materials Science and Engineering*, B94, 247-259.
- [3] Paramitha, S. S. (2009). Aplikasi pengadukan ultrasonik dan pemanasan microwave untuk memurnikan karbon nanotube yang disintesis dengan metode dekomposisi katalitik metana. Departemen Teknik Kimia. Depok, Universitas Indonesia.
- [4] Hazzim F. Abbas&Daud, W. M. A. W. (2010). Hydrogen production by methane decomposition: A review. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35, 1160-1190.
- [5] Ermakova, M. A. (2000). Effective Catalysts for Direct of Methane to Produce Hydrogen and Filamentous Carbon. *Applied Catalysis A: General* 201, 61-71.
- [6] M Grujicic,G Cao,Gersten, B. (2002). An atomic-scale analysis of catalytically-assisted chemical vapor deposition of carbon nanotubes. *Materials Science and Engineering*, B94, 247-298.
- [7] Muradov, N. (2001). Catalysis of Methane Decomposition over Elemental Carbon. *Catalysis Communication* 2, 89 – 94.
- [8] Y. Wang, et al. (2002). The large scale production of carbon nanotubes in a nano aglommerate fluidized bed reactor. *Chemical Physics Letters*, 364, 568-572.
- [9] Qian Weizhong, et al. (2004). Production of hydrogen and carbon nanotubes from methane decomposition in a two-stage fluidized bed reactor. *Applied Catalysis A: General*, 260,2, 223–228.
- [10] A. Morancais, et al. (2007). A Parametric Study of The Large Scale Production of Multi-Walled Carbon Nanotubes by a Fluidized Bed Catalytic Chemical Vapour Deposition. *Carbon*, 45.

- [11] Yulianti, I. (2008). Perancangan reaktor Katalis Terstruktur untuk Produksi Karbon Nanotube dan Hidrogen melalui Proses Dekomposisi Katalitik Metana. Departemen Teknik Kimia. Depok, Universitas Indonesia.
- [12] W.W. PurwantoE. SaputraL.Song (2005). Utilization of Very Small Field of Natural Gas by Methane Catalytic Decomposition, Effect of Nickel Catalyst Diameter and Acidity on Nanocarbon and Hydrogen Quality and Methane Activation. The International Energy Conference, SCENCER, 7th Asean Science and Technology Weeks. Jakarta.
- [13] Michio Inagaki&Radovic, L. (2002). Nanocarbons. *Carbon*, 40,2279-2282.
- [14] Michio InagakiKatsumi KanekoNishizawa, T. (2004). Nanocarbons-recent research in Japan. *Carbon*, 42, 1401-1417.
- [15] Takenaka, S., et al. (2001). Decomposition of methane over supported-Ni catalysts: effects of the supports on the catalytic lifetime. *aptaca A: General*, 217, 101-110.
- [16] Anonim. (2007). Fullerenes.27 Mei, 2011, <http://www.nano-c.com/fullerenes.html>.
- [17] Anonim. (2009). Nanotechnologies-Carbon nanotubes. 30 Mei, 2011, <http://www.robaid.com/tech/nanotechnologies-carbon-nanotubes.htm>.
- [18] Anonim. (2007). Nanocarbon. <http://www.complexphysics.org/Projects/Nanocarbon.html>.
- [19] Wijaya, F. (2008). Pengaruh perlakuan ultrasonik pada preparasi katalis Ni/Cu/Al₂O₃ dengan metode kopresipitasi terhadap kualitas karbon nanotube. Departemen Teknik Kimia. Depok, Universitas Indonesia.
- [20] X. Chen, et al. (2004). Electrochemical hydrogen storage of carbon nanotubes and carbon nanofibers. *International Journal of Hydrogen Energy*, 29,7, 743-748.
- [21] Satterfield, C. N. (1991). *Heterogenous Catalysis in Industrial Practical*. Singapore: McGraw Hill.
- [22] J. Chen, et al. (2001). Formation of bamboo-shaped carbon filaments and dependence of their morphology on catalyst composition and reaction conditions. *Carbon*, 39, 1467-1475.

- [23] W.W. Purwanto, et al. (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.
- [24] Jiuling Chen, et al. (2004). Production of CO_x-free hydrogen and nanocarbon by direct decomposition of undiluted methane on Ni–Cu–alumina catalysts. *Applied Catalysis A: General*, 269,1-2, 179-186.
- [25] M.A. Ermakova&Yu, D. (2002). Ni/SiO₂ and Fe/SiO₂ catalysts for production of hydrogen and filamentous carbon via methane decomposition. *Catalysis Today*, 77,225-235.
- [26] S.H. Sharif ZeinAbdul Rahman MohamedSai, P. S. T. (2004). Kinetic studies on catalytic decomposition of methane to hydrogen and carbon over Ni/TiO₂ Catalyst. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 43,4564-4870.
- [27] Siang-Piao Chai, et al. (2006). *The production of CO_x-free hydrogen and carbon nanofibers from direct catalytic decomposition of methane*. The 1st International Conference on Natural Resources Engineering & Technology, Putrajaya, Malaysia.
- [28] Rita Aiello, et al. (2000). Hydrogen production via the direct cracking of methane over Ni/SiO₂ : catalyst deactivation and regeneration. *Applied Catalysis A: General*, 192, 227-234.
- [29] J.L. Pinilla, et al. (2007). Production of hydrogen and carbon nanofibers by thermal decomposition of methane using metal catalysts in a fluidized bed reactor. *International Journal of Hydrogen Energy*, 32,18, 4821-4829.
- [30] Huang Wan&et.al. (2007). Synthesis of aligned carbon nanotubes on double-sided metallic substrate by chemical vapor deposition. *J. Phys. Chem*, 111, 12617-12624.
- [31] Yuswan MuharamW.W. PurwantoAfianty, A. (2007). Production of Carbon Nanotubes and Hydrogen from Methane Decomposition in the Reactor with a Structured Catalyst. 14th Regional Symposium of Chemical Engineering (RSCE).

- [32] Yulianti, D. (2008). Pengaruh Space Time, Temperatur, dan Rasio Umpan terhadap Kinerja Reaktor Gauze untuk Produksi Hidrogen dan Nanokarbon melalui Reaksi Dekomposisi Metana. Departemen Teknik Kimia. Depok, Universitas Indonesia.
- [33] Mopoung, S. (2011). Occurence of carbon nanotube from banana peen activated carbon mixed with mineral oil. *International Journal of the Physical Sciences*, 6,7, 1789-1792.
- [34] Chunxiang Luo, et al. (2008). Growth mechanism of Y-junctions and related carbonnanotube junctions synthesized by Au-catalyzed chemicalvapor deposition. *Carbon*, 46, 440-444.



Lampiran 1. Perhitungan Kebutuhan Katalis

Menghitung kebutuhan katalis yang diperlukan

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

Mr Ni = 58,60

Mr Cu = 63,546

Mr Al = 29,9815

Mr campuran = $(0,5 \times 58,69) + (0,25 \times 63,55) + (0,25 \times 26,98) = 51,9775$

Basis = 1 gram

n campuran = $1 \text{ gram} / (51,9775 \text{ gram/mol}) = 0,019239$

Perbandingan mol Ni : Cu : Al = 0,00962 : 0,00481 : 0,00481

	Ni(NO ₃) ₂ .6H ₂ O	Cu(NO ₃) ₂ .3H ₂ O	Al(NO ₃) ₃ .9H ₂ O
Mr	290,79	241,60	375,13
Perbandingan mol	0,00962	0,00481	0,00481
Perbandingan massa	2,79727	1,16204	1,80429

Jumlah mol nitrat = $(2 \times 0,00962) + (2 \times 0,00481) + (3 \times 0,00481) = 0,04329$

Untuk larutan 2 M

$V = n/M = 0,04329 \text{ mol} / (2 \text{ mol/L}) = 0,02164 \text{ L}$

Larutan katalis akan dibuat sebanyak 2 L, maka faktor pengali

Faktor pengali = $2 \text{ L} / 0,02164 \text{ L} = 92,40$

Jumlah katalis yang dibutuhkan (dalam gram)

$\text{Ni(NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O} = (92,40 \times 2,79727) = 258,47 \text{ gram}$

$\text{Cu(NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O} = (92,40 \times 1,16204) = 107,37 \text{ gram}$

$\text{Al(NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} = (92,40 \times 1,80429) = 166,72 \text{ gram}$

Asam Sitrat = $(92,40 / 0,04329) \times 210,14 = 850,59 \text{ gram}$

Lampiran 2. Data Kalibrasi Gas Chromatography

Temperatur Injeksi = 130°C

Temperatur Kolom = 100°C

Kalibrasi CH₄

Volume (mL)	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	τ1	τ2	τ3	PA1	PA2	PA3	C	τ	PA
0,20	93,8752	93,3349	93,9616	1,952	1,962	1,942	205221	201909	206172	93,7239	1,952	204434,00
0,40	95,7398	95,5568	95,7590	1,897	1,905	1,898	421493	417640	414880	95,6852	1,900	418004,33
0,60	96,6521	96,4973	96,4360	1,838	1,848	1,840	640125	628851	637703	96,5285	1,842	635559,67
0,80	97,7376	97,4195	97,0473	1,808	1,782	1,825	857689	855218	840430	97,4015	1,805	851112,33
1,00	98,8074	98,2743	97,9668	1,775	1,792	1,762	1081922	1085587	1070007	98,3495	1,776	1079172,00

Kalibrasi H₂

Volume (mL)	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	τ1	τ2	τ3	PA1	PA2	PA3	C	τ	PA
0,20	98,9790	97,3880	98,8654	0,490	0,488	0,483	847330	840200	846444	98,4108	0,487	844658,00
0,40	99,5089	99,4365	99,4869	0,512	0,500	0,512	1615006	1598597	1613167	99,4774	0,508	1608923,33
0,60	99,5542	99,4579	99,7442	0,520	0,517	0,525	2307318	2302490	2324798	99,5854	0,521	2311535,33
0,80	99,7999	100,0000	99,6508	0,533	0,540	0,533	2958471	2984837	2974549	99,8169	0,535	2972619,00
1,00	100,0000	97,7834	99,7264	0,563	0,550	0,545	3622041	3486635	3590940	99,1699	0,553	3566538,67

(lanjutan)

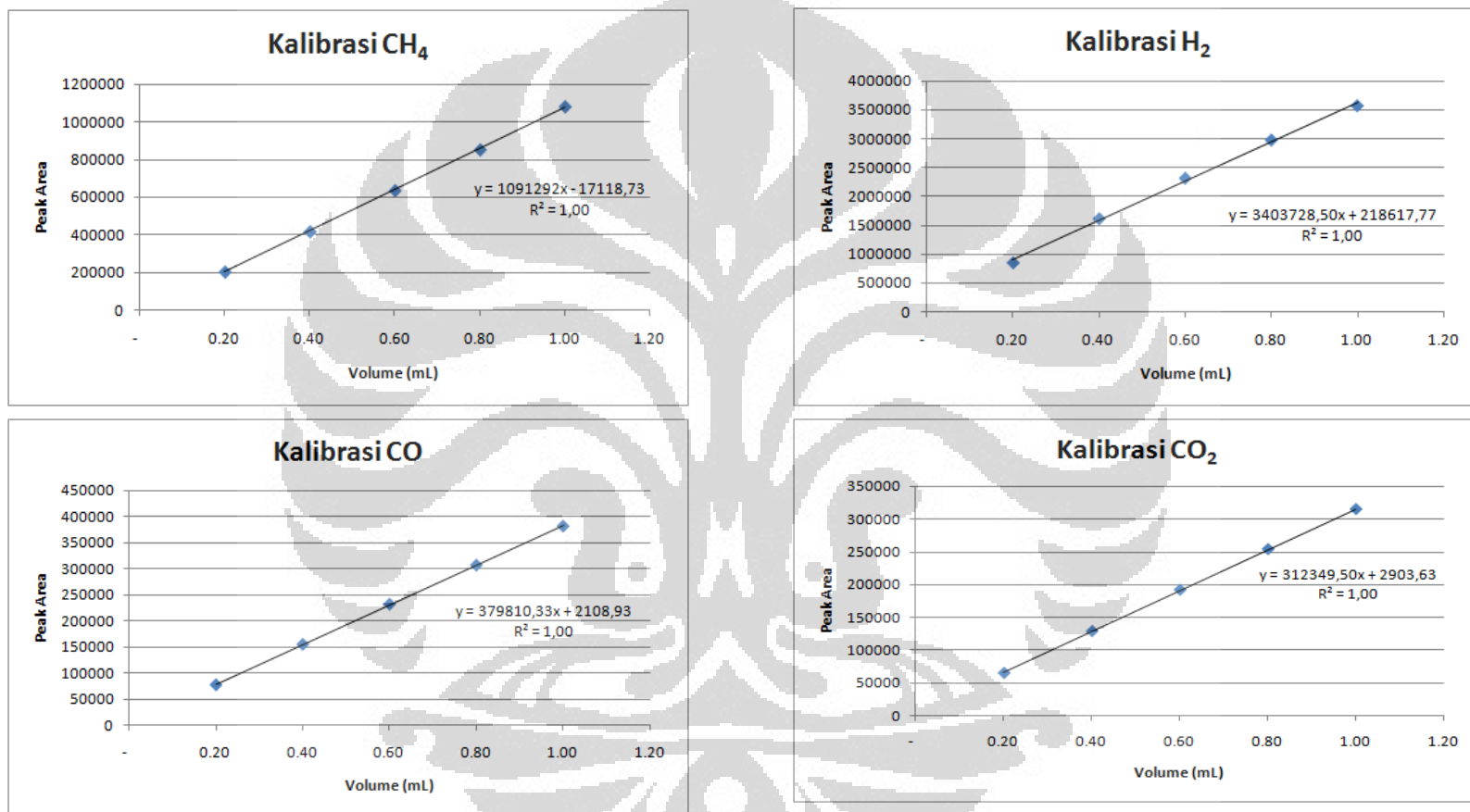
Kalibrasi CO

Volume (mL)	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	τ_1	τ_2	τ_3	PA1	PA2	PA3	C	τ	PA
0,20	94,6946	94,8031	94,9066	1,067	1,062	1,053	76099	76623	78256	94,8014	1,061	76992,67
0,40	96,5132	96,5064	96,3697	1,047	1,043	1,050	154633	154812	153801	96,4631	1,047	154415,33
0,60	97,1090	97,0512	97,0863	1,023	1,028	1,033	231852	230460	232048	97,0822	1,028	231453,33
0,80	97,3623	97,3637	97,3682	1,025	1,018	1,023	305871	306026	306725	97,3647	1,022	306207,33
1,00	98,2887	97,6218	97,4528	0,995	0,997	1,002	386172	380816	375733	97,7878	0,998	380907,00

Kalibrasi CO₂

Volume (mL)	Concentration			Retention Time			Peak Area			Mean		
	C1	C2	C3	τ_1	τ_2	τ_3	PA1	PA2	PA3	C	τ	PA
0,20	98,6191	96,4425	96,2104	3,903	3,913	3,915	63540	66172	63713	97,0907	3,910	64475,00
0,40	96,7262	96,8238	96,5709	3,820	3,812	3,808	126924	129472	128292	96,7070	3,813	128229,33
0,60	97,3180	97,5190	97,5657	3,725	3,720	3,723	191070	193725	189037	97,4676	3,723	191277,33
0,80	97,8091	97,9745	98,0147	3,637	3,642	3,648	253696	251931	254248	97,9328	3,642	253291,67
1,00	99,2107	98,2460	98,2874	3,583	3,613	3,563	316924	309007	316949	98,5814	3,586	314293,33

(lanjutan)



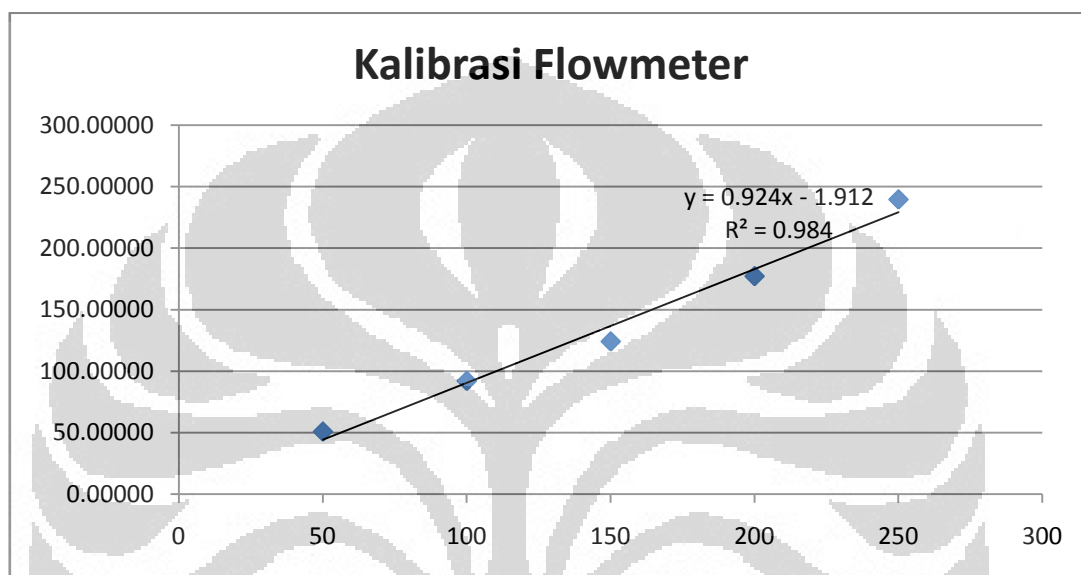
Gas	Response Factor	RRF
CH ₄	1.091.292	1,0
H ₂	3.403.728	3,1190

Gas	Response Factor	RRF
CO	379.810,33	0,3480
CO ₂	312.349,50	0,2862

Lampiran 3. Data Kalibrasi Flowmeter

Display flow (cc/menit)	Volum (cc)	Waktu (s)	Laju alir (cc/menit)	Rata-rata laju alir (cc/menit)	Laju alir (l/h)	Rata-rata laju alir(l/h)
50	5	5,93	50,59022	50,89867	3035,41315	3053,92014
	5	5,77	51,99307		3119,58406	
	10	11,73	51,15090		3069,05371	
	10	11,86	50,59022		3035,41315	
	15	17,76	50,67568		3040,54054	
	15	17,86	50,39194		3023,51624	
100	5	3,16	94,93671	92,08596	5696,20253	5525,15779
	5	3,33	90,09009		5405,40541	
	10	6,41	93,60374		5616,22465	
	10	6,61	90,77156		5446,29349	
	15	9,81	91,74312		5504,58716	
	15	9,85	91,37056		5482,23350	
150	5	2,42	123,96694	124,13575	7438,01653	7448,14512
	5	2,43	123,45679		7407,40741	
	10	4,86	123,45679		7407,40741	
	10	4,73	126,84989		7610,99366	
	15	7,3	123,28767		7397,26027	
	15	7,27	123,79642		7427,78542	
200	5	1,7	176,47059	177,14274	10588,23529	10628,56434
	5	1,68	178,57143		10714,28571	
	10	3,36	178,57143		10714,28571	
	10	3,39	176,99115		10619,46903	
	15	5,12	175,78125		10546,87500	
	15	5,1	176,47059		10588,23529	
250	5	1,18	254,23729	239,46933	15254,23729	14368,15974
	5	1,26	238,09524		14285,71429	
	10	2,45	244,89796		14693,87755	
	10	2,45	244,89796		14693,87755	
	15	3,89	231,36247		13881,74807	
	15	4,03	223,32506		13399,50372	

(lanjutan)



Lampiran 4. Pengambilan Data pada T=700°C dan W/F=0,0006 gr min/mL

Set laju alir CH₄ = 100 ml/min

Waktu (menit)	Volume bubble (ml)	Output		Peak Area				Komposisi gas (y, %)			
		Waktu bubble (detik)	flow (m ³ /hr)	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂
10	10	7,34	0,004904632	624809	431789	2475	1016	0,80734194	0,17888251	0,00918882	0,00458674
20	5	5,43	0,003314917	675295	397811	3427	3530	0,8185199	0,15459611	0,01193504	0,01494895
30	5	5,57	0,003231598	659089	431937	3856	6491	0,79281002	0,16658333	0,01332712	0,02727953
40	5	5,68	0,003169014	640287	458204	3814	5497	0,78336086	0,17973478	0,01340732	0,02349704
50	5	5,97	0,003015075	629754	436810	3816	5111	0,78854901	0,17536236	0,01372904	0,02235959
60	5	6,04	0,002980132	654057	467283	2112	3585	0,79523571	0,18215719	0,00737817	0,01522894
90	5	6,47	0,002782071	678124	412570	3657	1082	0,82227885	0,16039606	0,01274117	0,00458392
120	5	6,42	0,002803738	667914	414890	3860	1189	0,81834199	0,16297963	0,01358863	0,00508975
150	5	6,53	0,002756508	654912	413562			0,83162704	0,16837296	0	0
180	5	6,73	0,002674591	664296	415826			0,83285113	0,16714887	0	0
210	5	6,62	0,002719033	628489	408132			0,82767481	0,17232519	0	0
240	5	6,74	0,002670623	632047	420612			0,82415593	0,17584407	0	0
270	5	6,67	0,002698651	687351	418735			0,83659605	0,16340395	0	0
300	5	6,53	0,002756508	694726	407193			0,84180759	0,15819241	0	0

(lanjutan)

Waktu (menit)	Volume (m ³ /h)				Out molar flow rate (kmol/h)				Konversi	Kemurnian
	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄ (%)	H ₂ (%)
10	0,00395972	0,00087735	4,507E-05	2,24963E-05	0,000160852	3,56E-05	1,83E-06	9,14E-07	33,89%	18,14%
20	0,00271333	0,00051247	3,956E-05	4,95545E-05	0,000110221	2,08E-05	1,61E-06	2,01E-06	54,70%	15,89%
30	0,00256204	0,00053833	4,307E-05	8,81565E-05	0,000104076	2,19E-05	1,75E-06	3,58E-06	57,23%	17,36%
40	0,00248248	0,00056958	4,249E-05	7,44624E-05	0,000100844	2,31E-05	1,73E-06	3,02E-06	58,56%	18,66%
50	0,00237753	0,00052873	4,139E-05	6,74158E-05	9,65806E-05	2,15E-05	3,51E+02	2,74E-06	60,31%	18,19%
60	0,00236991	0,00054285	2,199E-05	4,53842E-05	9,62708E-05	2,21E-05	1,96E+02	1,84E-06	60,44%	18,64%
90	0,00228764	0,00044623	3,545E-05	1,27528E-05	9,29288E-05	1,81E-05	3,51E+02	5,18E-07	61,81%	16,32%
120	0,00229442	0,00045695	3,81E-05	1,42703E-05	9,32042E-05	1,86E-05	3,69E+02	5,80E-07	61,70%	16,61%
150	0,00229239	0,00046412	0	0	9,31217E-05	1,89E-05	0,00E+00	0,00E+00	61,73%	16,84%
180	0,00222754	0,00044705	0	0	9,04874E-05	1,82E-05	0,00E+00	0,00E+00	62,81%	16,71%
210	0,00225048	0,00046856	0	0	9,14192E-05	1,90E-05	0,00E+00	0,00E+00	62,43%	17,23%
240	0,00220101	0,00046961	0	0	8,94098E-05	1,91E-05	0,00E+00	0,00E+00	63,26%	17,58%
270	0,00225768	0,00044097	0	0	9,17119E-05	1,79E-05	0,00E+00	0,00E+00	62,31%	16,34%
300	0,00232045	0,00043606	0	0	9,42617E-05	1,77E-05	0,00E+00	0,00E+00	61,26%	15,82%

Lampiran 5. Pengambilan Data pada T=700°C dan W/F=0,0032 gr min/mL

Set laju alir CH₄ = 50 ml/min

Waktu (menit)	Volume bubble (ml)	Output		Peak Area				Komposisi gas (y, %)			
		Waktu bubble (detik)	flow (m ³ /hr)	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂
10	5	6,32	0,0028481	313617	1873531	6058	586	0,335866196	0,643300137	0,01864104	0,0021926
20	5	6,94	0,0025937	322555	1842615	4936	336	0,347324688	0,636139758	0,01527148	0,0012641
30	5	6,42	0,0028037	309222	1722478	3721		0,354543878	0,633197731	0,01225839	0
40	5	6,5	0,0027692	359103	1982772	3281	209	0,357327064	0,632565811	0,00938053	0,0007266
50	5	6,53	0,0027565	363552	1977154	2808		0,361553126	0,630423133	0,00802374	0
60	5	6,63	0,0027149	368002	1971537	2336		0,365508684	0,627824867	0,00666645	0
90	5	6,39	0,0028169	287795	1476649	1329		0,376177143	0,618831618	0,00499124	0
120	5	6,9	0,0026087	387274	1868140	1363		0,391127774	0,604917008	0,00395522	0
150	5	7	0,0025714	243302	1292549		665	0,36861811	0,627861808	0	0,0035201
180	5	7,15	0,0025175	386175	1929363			0,384345177	0,615654823	0	0
210	5	6,98	0,0025788	154711	902634		259	0,347653153	0,650313437	0	0,0020334
240	5	6,87	0,0026201	143985	849756		217	0,345131283	0,653051416	0	0,0018173
270	5	6,75	0,0026667	133640	804458			0,341299175	0,658700825	0	0
300	5	6,54	0,0027523	123295	759160		118	0,335856125	0,663020849	0	0,001123

(lanjutan)

Waktu (menit)	Volume (m ³ /h)				Out molar flow rate (kmol/h)				Konversi CH ₄ (%)	Kemurnian H ₂ (%)
	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂		
10	0,000956581	0,001832184	5,30916E-05	6,24482E-06	3,88584E-05	7,44E-05	2,16E-06	2,54E-07	0,000956581	18,14%
20	0,000900842	0,00164993	3,9609E-05	3,27857E-06	3,65942E-05	6,70E-05	1,61E-06	1,33E-07	0,000900842	15,89%
30	0,000994048	0,001775321	3,43693E-05	0	4,03804E-05	7,21E-05	1,40E-06	0,00E+00	0,000994048	17,36%
40	0,000989521	0,001751721	2,59768E-05	2,01211E-06	4,01965E-05	7,12E-05	1,06E-06	8,17E-08	0,000989521	18,66%
50	0,000996624	0,001737767	2,21175E-05	0	4,0485E-05	7,06E-05	8,98E-07	0,00E+00	0,000996624	18,19%
60	0,000992331	0,001704502	1,8099E-05	0	4,03106E-05	6,92E-05	7,35E-07	0,00E+00	0,000992331	18,64%
90	0,001059654	0,001743188	1,40598E-05	0	4,30454E-05	7,08E-05	5,71E-07	0,00E+00	0,001059654	16,32%
120	0,001020333	0,001578044	1,0318E-05	0	4,14482E-05	6,41E-05	4,19E-07	0,00E+00	0,001020333	16,61%
150	0,000947875	0,001614502	0	9,05164E-06	3,85047E-05	6,56E-05	0,00E+00	3,68E-07	0,000947875	16,84%
180	0,000967582	0,0015499	0	0	3,93053E-05	6,30E-05	0,00E+00	0,00E+00	0,000967582	16,71%
210	0,000896527	0,001677026	0	5,24375E-06	3,64189E-05	6,81E-05	0,00E+00	2,13E-07	0,000896527	17,23%
240	0,000904274	0,001711052	0	4,76149E-06	3,67336E-05	6,95E-05	0,00E+00	1,93E-07	0,000904274	17,58%
270	0,000910131	0,001756536	0	0	3,69715E-05	7,14E-05	0,00E+00	0,00E+00	0,000910131	16,34%
300	0,000924375	0,001824828	0	3,0909E-06	3,75501E-05	7,41E-05	0,00E+00	1,26E-07	0,000924375	15,82%

Lampiran 6. Pengambilan Data pada T=700°C dan W/F=0,006 gr min/mL

Set laju alir CH₄ = 20 ml/min

Waktu (menit)	Volume bubble (ml)	Output		Peak Area				Komposisi gas (y, %)			
		Waktu bubble (detik)	flow (m ³ /hr)	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂
10	5	24,23	0,0007429	271010	1973610			0,299862065	0,700137935	0	0
20	5	24,48	0,0007353	268531	1975729			0,297711953	0,702288047	0	0
30	5	24,92	0,0007223	267010	1959428			0,298256807	0,701743193	0	0
40	5	25,24	0,0007132	265050	1910306			0,302042369	0,697957631	0	0
50	5	25,11	0,0007168	276756	2021102			0,299274964	0,700725036	0	0
60	5	25,85	0,0006963	271107	1950664			0,302398488	0,697601512	0	0
90	5	25,54	0,0007048	273863	1922785			0,307593774	0,692406226	0	0
120	5	25,7	0,0007004	275385	1930616			0,307908577	0,692091423	0	0
150	5	27,31	0,0006591	275835	1924876			0,308891908	0,691108092	0	0
180	5	26,56	0,0006777	285403	2009414			0,306998976	0,693001024	0	0
210	5	26,12	0,0006891	273051	1908293			0,308573523	0,691426477	0	0
240	5	26,84	0,0006706	278492	1924649			0,310967416	0,689032584	0	0
270	5	26,21	0,0006868	272461	1907283			0,308225074	0,691774926	0	0
300	5	25,8	0,0006977	274231	1918254			0,308382806	0,691617194	0	0

(lanjutan)

Waktu (menit)	Volume (m ³ /h)				Out molar flow rate (kmol/h)				Konversi	Kemurnian
	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄ (%)	H ₂ (%)
10	0,000222762	0,000520119	0	0	9,04907E-06	2,11E-05	0,00E+00	0,00E+00	81,41%	70,01%
20	0,000218906	0,000516388	0	0	8,89243E-06	2,10E-05	0,00E+00	0,00E+00	81,73%	70,23%
30	0,000215434	0,000506877	0	0	8,75141E-06	2,06E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,02%	70,17%
40	0,000215403	0,000497751	0	0	8,75012E-06	2,02E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,02%	69,80%
50	0,000214534	0,000502312	0	0	8,71484E-06	2,04E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,09%	70,07%
60	0,000210568	0,000485757	0	0	8,55371E-06	1,97E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,42%	69,76%
90	0,000216785	0,000487992	0	0	8,80628E-06	1,98E-05	0,00E+00	0,00E+00	81,90%	69,24%
120	0,000215656	0,000484733	0	0	8,76041E-06	1,97E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,00%	69,21%
150	0,00020359	0,000455509	0	0	8,27028E-06	1,85E-05	0,00E+00	0,00E+00	83,01%	69,11%
180	0,000208057	0,000469654	0	0	8,45171E-06	1,91E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,63%	69,30%
210	0,000212646	0,000476481	0	0	8,63816E-06	1,94E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,25%	69,14%
240	0,000208547	0,000462093	0	0	8,47165E-06	1,88E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,59%	68,90%
270	0,000211677	0,000475084	0	0	8,59877E-06	1,93E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,33%	69,18%
300	0,000215151	0,000482524	0	0	8,73989E-06	1,96E-05	0,00E+00	0,00E+00	82,04%	69,16%

Lampiran 7. Perhitungan Konsentrasi Gas pada T=700°C dan W/F=0,006 gr min/mL

P = 1 atm ; T=300,5 K

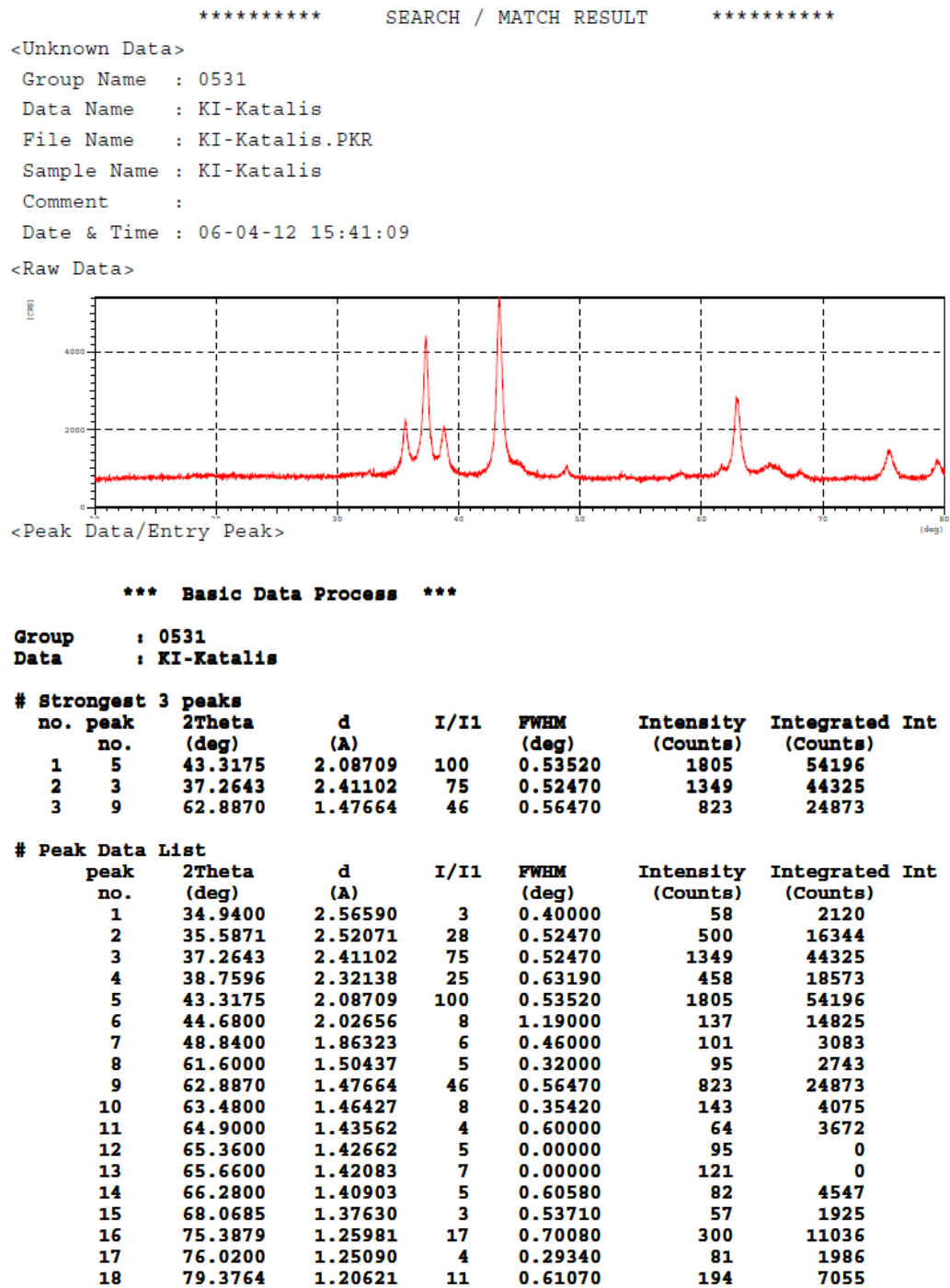
Volume = % volume x Laju alir

$n \text{ (mol)} = PV/RT$

$C = n/F$

Jarak (cm)	Suhu Reaksi (oC)	Laju Alir (ml/menit)	Peak Area		Fraksi volume		Volume		Mol		Konsentrasi	
			CH ₄	H ₂	CH ₄	H ₂	CH ₄	H ₂	CH ₄	H ₂	CH ₄	H ₂
27	646	15,113	554507	1776349	0,4933	0,5067	7,4555	7,6575	0,3026	0,3108	0,0200	0,0206
24	670	15,656	34705	127657	0,4589	0,5411	7,1838	8,4722	0,2915	0,3438	0,0186	0,0220
18	690	16,742	664142	1763957	0,5401	0,4599	9,0421	7,6999	0,3670	0,3125	0,0219	0,0187
15	693	17,285	667513	1730227	0,5461	0,4539	9,4399	7,8451	0,3831	0,3184	0,0222	0,0184
6	591	18,914	692413	1597076	0,5749	0,4251	10,8732	8,0408	0,4413	0,3263	0,0233	0,0173

Lampiran 8. Hasil Karakterisasi XRD Katalis Ni-Cu-Al



(lanjutan)

```

*** Basic Data Process ***

# Data Information
  Group           : 0531
  Data            : KI-Katalis
  Sample Name     : KI-Katalis
  Comment         :
  Date & Time     : 06-04-12 15:41:09

# Measurement Condition
  X-ray tube
    target        : Cu
    voltage       : 40.0 (kV)
    current       : 30.0 (mA)
  Slits
    Auto Slit     : not Used
    divergence slit : 1.00000 (deg)
    scatter slit  : 1.00000 (deg)
    receiving slit : 0.30000 (mm)
  Scanning
    drive axis    : Theta-2Theta
    scan range    : 10.0000 - 80.0000 (deg)
    scan mode     : Continuous Scan
    scan speed    : 2.0000 (deg/min)
    sampling pitch : 0.0200 (deg)
    preset time   : 0.60 (sec)

# Data Process Condition
  Smoothing       [ AUTO ]
    smoothing points : 29
  B.G.Subtraction [ AUTO ]
    sampling points  : 31
    repeat times     : 30
  Ka1-a2 Separate [ MANUAL ]
    Ka1 a2 ratio     : 50 (%)
  Peak Search     [ AUTO ]
    differential points : 29
    FWHM threshold    : 0.050 (deg)
    intensity threshold : 30 (par mil)
    FWHM ratio (n-1)/n : 2
  System error Correction [ NO ]
  Precise peak Correction [ NO ]

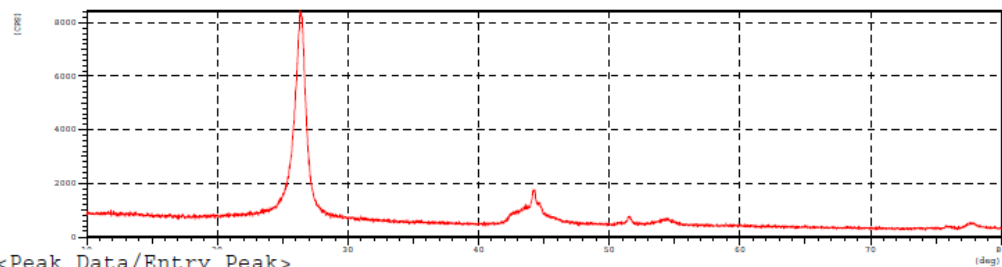
```

**Lampiran 9. Hasil Karakterisasi XRD Karbon pada W/F = 0,006 gr min/mL;
T=700°C; P= 1 atm**

<Unknown Data>

Group Name : 0523
Data Name : KI-700
File Name : KI-700.PKR
Sample Name : KI-700
Comment :
Date & Time : 05-28-12 13:47:54

<Raw Data>



<Peak Data/Entry Peak>

*** Basic Data Process ***

Group : 0523
Data : KI-700

# Strongest 3 peaks							
no.	peak no.	2Theta (deg)	d (Å)	I/I1	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)
1	3	26.3405	3.38080	100	0.94970	2972	161810
2	7	44.2000	2.04745	14	1.30860	418	25960
3	6	43.3000	2.08790	7	0.00000	215	0

# Peak Data List							
peak no.	2Theta (deg)	d (Å)	I/I1	FWHM (deg)	Intensity (Counts)	Integrated Int (Counts)	Int
1	22.3800	3.96933	1	3.26000	31	4877	
2	23.7200	3.74804	3	1.41340	85	16731	
3	26.3405	3.38080	100	0.94970	2972	161810	
4	29.1400	3.06206	1	1.12000	37	8055	
5	42.4200	2.12915	4	0.56000	133	10371	
6	43.3000	2.08790	7	0.00000	215	0	
7	44.2000	2.04745	14	1.30860	418	25960	
8	45.8600	1.97712	3	1.00000	81	5492	
9	46.8200	1.93880	1	0.60000	32	1402	
10	51.4933	1.77328	3	0.58670	86	2941	
11	54.2933	1.68826	3	1.38670	77	6347	
12	77.6533	1.22861	3	0.89330	78	5154	

(lanjutan)

*** Basic Data Process ***

Data Information

Group : 0523
 Data : KI-700
 Sample Name : KI-700
 Comment :
 Date & Time : 05-28-12 13:47:54

Measurement Condition

X-ray tube
 target : Cu
 voltage : 40.0 (kV)
 current : 30.0 (mA)
 Slits
 Auto Slit : not Used
 divergence slit : 1.00000 (deg)
 scatter slit : 1.00000 (deg)
 receiving slit : 0.30000 (mm)
 Scanning
 drive axis : Theta-2Theta
 scan range : 10.0000 - 80.0000 (deg)
 scan mode : Continuous Scan
 scan speed : 2.0000 (deg/min)
 sampling pitch : 0.0200 (deg)
 preset time : 0.60 (sec)

Data Process Condition

Smoothing [AUTO]
 smoothing points : 49
 B.G.Subtraction [AUTO]
 sampling points : 51
 repeat times : 30
 K α 1-a2 Separate [MANUAL]
 K α 1 a2 ratio : 50 (%)
 Peak Search [MANUAL]
 differential points : 49
 FWHM threshold : 0.050 (deg)
 intensity threshold : 10 (per mil)
 FWHM ratio (n-1)/n : 2
 System error Correction [NO]
 Precise peak Correction [NO]