



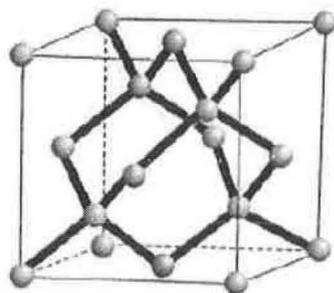
BAB II DASAR TEORI

2.1 Karbon

Karbon merupakan unsur yang unik (Nieto-Marquez et al., 2010) dan mampu dimanfaatkan dalam banyak aplikasi (Yihong et al., 2014) karena memiliki 4 elektron valensi yang mampu berikatan dengan banyak atom baik atom karbon itu sendiri maupun atom lainnya dimana setiap senyawa yang terbentuk memiliki sifat yang berbeda (Coville et al., 2011). Bentukan modifikasi struktur yang berbeda dari sebuah unsur karbon akan membentuk alotrop karbon. Karbon memiliki beberapa jenis alotrop, antara lain: *diamond*, karbon amorf, grafit, *fullerene*, dan karbon nano (Dichiara, 2012) (Yihong et al., 2014).

2.1.1 *Diamond*

Diamond tersusun atas atom atom karbon yang saling berikatan membentuk ikatan kovalen hibridisasi sp^3 (Falcao & Wudl, 2007). Ikatan hibridisasi sp^3 umumnya memiliki bentuk tetrahedral dimensi 3 (Falcao & Wudl, 2007). Hal tersebut menyebabkan *diamond* merupakan material yang sangat kuat (memiliki skala 10 pada skala Mohs) (Falcao & Wudl, 2007). *Diamond* dapat juga ditemukan dalam bentuk heksagonal, namun bentuk tersebut memiliki kekerasan yang lebih rendah (skala 7-8 pada skala Mohs) dan lebih dikenal dengan nama lonsdaleite (Falcao & Wudl, 2007). *Diamond* memiliki titik lebur yang sangat tinggi (4000°C), bersifat insulator, dan memiliki densitas 3,51 g/ml (lebih besar dari densitas grafit (2,22 g/ml)) (Bonchev & Rouvray, 1999). Karena sifatnya yang sangat kuat, *diamond* dapat digunakan untuk memecah material lain (Kelter et al., 2009). Gambar struktur *diamond* disajikan pada gambar 2.1. dan tabel karakteristik *diamond* disajikan pada tabel 2.1



Gambar 2.1 Struktur *diamond* (Kruger, 2010)

Tabel 2.1 Karakteristik *diamond* (Kruger, 2010)

Karakteristik	<i>Diamond</i>
Warna	Tidak berwarna
Indeks refraksi	2.43
Densitas	3.514 g/ cm ³
Entalpi pembakaran	295.4 kJ/ mol
Kekerasan (<i>mohs</i>)	10
<i>Band gap</i>	5.5 eV
<i>Specific resistance</i>	10 ¹⁴ - 10 ¹⁶ Ωcm

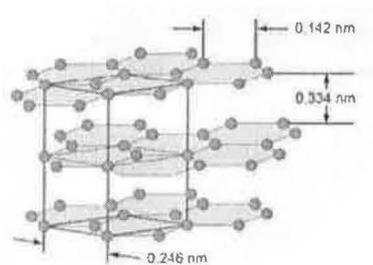
2.1.2 Karbon Amorf

Karbon amorf adalah senyawa karbon yang tidak memiliki struktur kristal (Nic et al., 2014). Salah satu jenis karbon amorf yang umum dikenal adalah karbon aktif. Karbon aktif adalah karbon amorf yang tersusun atas ikatan kovalen atom-atom karbon yang memiliki luas permukaan pori yang relatif besar sehingga mampu memiliki sifat sebagai adsorben (Jamilatun, 2014). Pori-pori pada karbon aktif dibagi menjadi 3 berdasarkan ukuran porinya yaitu *micropore* (<20 Å), *mesopore* (20-500 Å), dan *macropore* (>500 Å) (Bansal & Goyal, 2005). Pada proses adsorpsi, *macropore* akan berperan sebagai jalan masuk fluida ke karbon aktif. Setelah itu fluida akan melalui *mesopore* dan mulai teradsorpsi. Proses adsorpsi adsorbat akan terjadi pada bagian *micropore* (Bansal & Goyal, 2005). Umumnya luas permukaan karbon aktif terdiri atas 95% *micropore* dan 5% *mesopore* sedangkan *macropore* tidak berperan dalam memberikan luas permukaan karbon aktif (Kristianto et al., 2015). Daya adsorbs karbon aktif dipengaruhi oleh proses aktivasi, dimana pada proses dilakukan dengan cara memecah ikatan hidrokarbon atau mengoksidasi molekul-molekul permukaan sehingga luas permukaan bertambah besar (Jamilatun, 2014). Struktur karbon amorf dan gambar karbon aktif disajikan pada gambar 2.2.

**Gambar 2.2** Struktur karbon amorf (kiri) ; Karbon aktif (kanan) (Aqel et al., 2012)

2.1.3 Grafit

Grafit merupakan salah satu bentuk alotrop karbon yang terdiri atas beberapa lembaran *graphene* yang tersusun dari atom-atom karbon yang berikatan kovalen membentuk ikatan hibridisasi sp^2 (Falcao & Wudl, 2007). Setiap atom karbon pada grafit akan berikatan dengan 3 atom karbon lainnya (Falcao & Wudl, 2007). Pada grafit jarak antara lapisan *graphene* berkisar $3,354\text{\AA}$, hal ini disebabkan oleh adanya gaya van der Waals yang lemah antar lapisan *graphene* sehingga grafit merupakan modifikasi termodinamika paling stabil pada karbon dibandingkan *diamond* karena struktur grafit yang berlapis dan ikatan yang lemah antara lembaran *graphene* (Kruger, 2010) (Falcao & Wudl, 2007). Grafit bersifat konduktor listrik yang baik, hal ini dikarenakan pada grafit terdapat delokalisasi elektron pada ikatan π sehingga elektron dapat bergerak dengan bebas (Kelter et al., 2009). Grafit umumnya digunakan sebagai isi pada pensil (Kelter et al., 2009). Gambar struktur grafit disajikan pada gambar 2.3

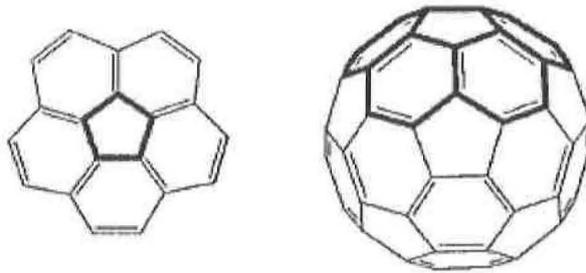


Gambar 2.3 Struktur grafit (Dichiara, 2012)

2.1.4 Fullerene

Setelah ditemukannya grafit dan *diamond*, ditemukan alotrop molekular yaitu *fullerene* pada tahun 1985 oleh Kroto, Curl, dan Smalley yang strukturnya berbeda dari grafit dan *diamond* (Dichiara, 2012). *Fullerene* merupakan material karbon nano dimensi nol (Mostofizadeh et al., 2011). Bentuk *fullerene* yaitu bulat, yang tersusun dari 60 atom karbon murni (C_{60}) atau lebih dengan atom karbon yang terletak di tengah struktur polyhedral yang terdiri dari ikatan pentagonal dan heksagonal (Mostofizadeh et al., 2011). Struktur dari *fullerene* disajikan pada gambar 2.4. Dari gambar 2.4, ikatan pentagonal dipisahkan satu sama lain oleh ikatan heksagonal (Dichiara, 2012). Bentuk bulat *fullerene* terlihat seperti bola sepak atau disebut juga *buckyball* (Mostofizadeh et al., 2011). Adanya pasangan antara ikatan heksagonal dan pentagonal ini menyebabkan tidak terdapatnya ikatan yang menggantung pada *fullerene* (*dangling bonds*) yang menyebabkan *fullerene*

bersifat lebih stabil (Parshotam, 2007). *Fullerene* dapat memiliki ukuran yang bervariasi seperti C72 dan C80. Bentuk dari *fullerene* tersebut dapat dihasilkan apabila jumlah ikatan pentagonal konstan (12 ikatan) dan ikatan heksagonal divariasikan (Coville et al., 2011). Dalam aplikasinya, *fullerene* banyak digunakan pada perangkat optik (Coville et al., 2011), bahan penguat pada komposit, obat-obatan seperti antibiotik (Mostofizadeh et al., 2011), dan sebagai anoda pada baterai lithium (Parshotam, 2007) .



Gambar 2.4 Struktur buckminster fullerene (Kruger, 2010)

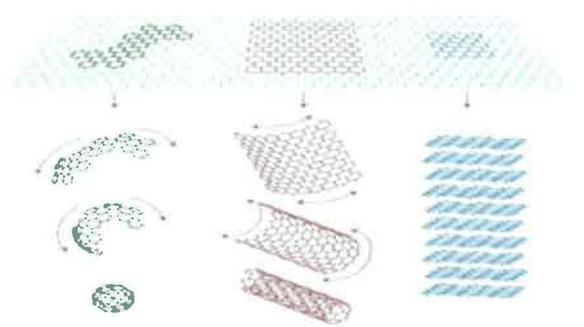
Penemuan *fullerene* ini memicu penemuan baru dalam bidang material karbon nano, yaitu *carbonnanotubes* (CNT). Pada saat ini material karbon nano khususnya dalam bidang CNT, *fullerene*, dan *graphene* banyak dikembangkan dan mendapat perhatian para peneliti dikarenakan sifat elektrik, termal, kimia, dan magnetik yang dapat diaplikasikan di berbagai area penting seperti bahan komposit, penyimpanan energi dan konversi, sensor kimia, *drug delivery*, perangkat emisi lapangan, *catalyst support*, dan komponen elektronik nano (Paradise & Goswami, 2006).

2.2 Material Karbon Nano

Material karbon nano merupakan salah satu bentuk dari alotrop karbon. Material karbon nano adalah suatu material yang tersusun atas atom karbon dengan diameter berukuran nanometer yang saling berikatan membentuk ikatan C hibridisasi sp² (Hodkiewicz, 2010). Ikatan C hibridisasi sp² tersebut memiliki bentuk segitiga planar dengan sudut antar atom C nya sebesar 120° yang dalam jumlah banyak akan membentuk suatu lembaran yang disebut sebagai *graphene* (Hodkiewicz, 2010). Hibridisasi sp² memiliki sifat yang stabil dan kuat. Hal ini disebabkan pada hibridisasi sp² terdapat ikatan rangkap antar karbon C (Chang, 2005). Selain itu, pada hibridisasi sp², orbital 2s, 2p_x, 2p_y membentuk ikatan σ , sedangkan orbital p_z tegak lurus bidang dan membentuk ikatan π (Chang, 2005). Ikatan sigma (σ) adalah ikatan kovalen yang terbentuk karena adanya tumpang tindih secara aksial pada ikatan- ikatan atom karbon sehingga membentuk ikatan

yang kuat. Ikatan phi (π) merupakan ikatan pada orbital p yang tegak lurus bidang datar sehingga merupakan ikatan yang lemah (Johnson, 1999). Banyaknya ikatan σ yang terbentuk dibandingkan ikatan π menunjukkan bahwa hibridisasi sp^2 bersifat kuat.

Teknologi nano meliputi banyak struktur dan teknik pada ukuran kurang dari 100 nm, contohnya CNT, kristal nano, *nanofibers*, *nanowires*, *quantum dots*, *nanopillar*, dan lain lain (Aqel et al., 2012). Material karbon nano dapat dikelompokkan menjadi struktur nol dimensi (*fullerene*, *nanodiamond*, *onion-likecarbon*), dimensi satu (*nanorod*, *nanowires*, *nanofibers*, *carbon nanotubes*), dimensi dua (*graphene*, *carbonnanowalls*), dan dimensi tiga (*bulk material* dengan blok bangunan skala nano) (Mostofizadeh et al., 2011) (Cao & Limmer, 2004). Pada dasarnya, material karbon nano terbentuk atas lembaran *graphene*. *Graphene* dapat dibentuk menjadi beberapa jenis material karbon nano seperti *carbon nanotube*, *carbon nanohorn*, *carbon nanospheres*, dan *fullerene*, serta dapat membentuk grafit. Hal tersebut disajikan pada gambar 2.5 (Hodkiewicz, 2010).



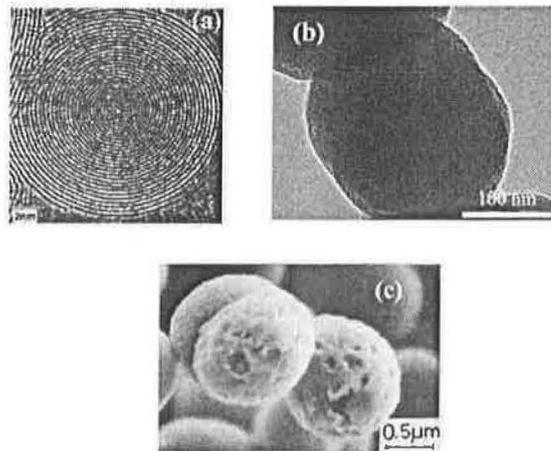
Gambar 2.5 *Graphene* di bentuk menjadi *fullerene*, *carbon nanotube*, dan grafit (AK & Novoselov, 2007)

Pada bagian ini akan di bahas lebih lanjut mengenai *carbon nanospheres*, *carbon nanohorn*, *carbon nanowires*, dan *carbon nanotube*.

2.2.1 *Carbon Nanospheres* (CNS)

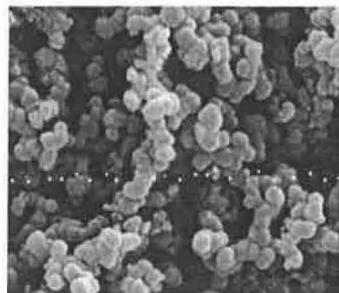
Carbon nanospheres (CNS) merupakan material karbon nano yang bentuknya menyerupai bola sama seperti *fullerene* (Coville et al., 2011). Berdasarkan ukurannya, struktur material karbon nano yang menyerupai bola dapat dibedakan menjadi beberapa jenis, yaitu C_n dan *carbon onion* dengan diameter 2-20 nm, *carbon nanospheres* (CNS) dengan diameter 50 nm-1 μ m, dan *carbon beads* dengan diameter diatas 1 μ m (Nieto-Marquez et al., 2010). Ketiga bentuk struktur material karbon nanodiatas disajikan pada gambar 2.6. CNS tersusun dari ikatan karbon hibridisasi sp^2 yang membentuk ikatan

pentagonal, heksagonal, dan heptagonal dalam lembaran *graphene* (Nieto-Marquez et al., 2010).



Gambar 2.6 a) *carbon onion*. b) *carbon nanospheres*. c) *carbon beads* (Nieto-Marquez et al., 2010)

CNS merupakan salah satu material karbon nano yang banyak diminati karena CNS memiliki struktur yang unik. Berbeda dengan *fullerene*, CNS memiliki struktur yang tidak tertutup sempurna sehingga banyak ikatan yang menggantung (*dangling bonds*) (Nieto-Marquez et al., 2010). Ikatan yang menggantung tersebut membuat CNS memiliki pinggiran *spheres* yang reaktif sehingga jarang ditemukan sebagai *spheres* tunggal tetapi ditemukan sebagai suatu gabungan *spheres* (Nieto-Marquez et al., 2010) seperti yang terlihat pada gambar 2.7. Karena strukturnya yang unik tersebut juga, CNS banyak digunakan untuk berbagai aplikasi, seperti penguat pada komposit, *support catalyst*, baterai litium, *drug delivery*, enkapsulasi logam transisi aktif (seperti pelumas, *injectable scaffolds* untuk regenerasi jaringan), di dalam katalis heterogen, didalam pewarna enkapsulasi, dalam pemurnian kontaminan dari air, perlindungan enzim dan protein, dan untuk penyimpanan data magnetik (Coville et al., 2011) (Deshmukh et al., 2010).

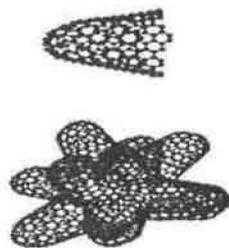


Gambar 2.7 Gabungan *spheres* (Nieto-Marquez et al., 2009)

2.2.3 Carbon nanohorn (CNH)

Carbon nanohorn merupakan material karbon nano yang berbentuk tabung dengan diameter sekitar 2-3 nm dengan salah satu ujungnya yang mengerucut dengan sudut 20° (Yang et al., 2005). Pada umumnya, CNH memiliki panjang 30- 50 nm (Yang et al., 2005). Sama halnya dengan dengan CNS, CNH juga tersusun atas lembaran *graphene*. Apabila CNH membentuk suatu agregat berbentuk suatu bola, maka agregat CNH tersebut memiliki diameter sekitar 80 nm (Yang et al., 2005). CNH yang telah membentuk suatu agregat dapat dibedakan menjadi 3 jenis, yaitu *dahlia*, *bud*, dan *seed aggregate*. Agregat bentuk *dahlia* memiliki kerucut dengan sudut sekitar 20° yang tampak jelas pada permukaan bola karena berukuran panjang sedangkan pada agregat bentuk *bud* dan *seed*, kerucut yang terbentuk berukuran pendek sehingga tidak terlalu terlihat pada permukaan bola (Li et al., 2009). Gambar dari CNH dan agregatnya disajikan pada gambar 2.8.

Dibandingkan dengan CNT, CNH memiliki beberapa keunggulan. Dalam proses sintesis CNT, dibutuhkan suatu katalis logam dimana setelah selesai proses sintesis sisa-sisa dari katalis logam tersebut dapat menimbulkan kerusakan pada CNT (Li et al., 2009). Sedangkan dalam proses sintesis CNH tidak dibutuhkan katalis logam melainkan dengan menggunakan grafit murni. Hal ini menyebabkan CNH yang disintesis akan memiliki kemurnian yang lebih tinggi (Li et al., 2009). CNH memiliki luas permukaan yang besar dan volume pori yang besar (Li et al., 2009) sehingga CNH banyak diaplikasikan pada adsorpsi gas dan penyimpanan gas (Yang et al., 2005). Selain itu, CNH banyak digunakan untuk suport katalis, elektroda pada *fuel cell*, kapasitor, aplikasi sensor, *support catalyst*, material komposit, dan *drug delivery system carriers* (Yuge, n.d.) (Li et al., 2009).



Gambar 2.8 CNH (atas) dan agregat dari CNH (bawah) (Lodermeyer et al., 2015)

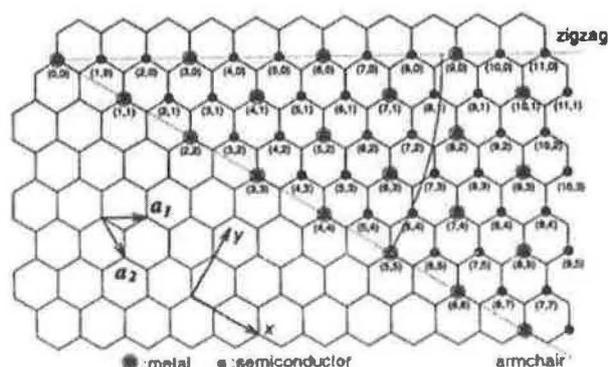
2.2.4 Carbon Nanowires

Carbon nanowires merupakan nanomaterial satu dimensi (Cao & Limmer, 2004). Terdapat berbagai tipe dari *nanowires*, yaitu *nanowires* logam, semikonduktor, oksida,

multi segmen, dan kuantum semikonduktor (Yavuzcetin, n.d.). Adanya keunikan dari geometri dan sifat fisik, *nanowires* dapat diaplikasikan pada bidang elektrik, magnetik, optikal, dan mekanik (Yavuzcetin, n.d.). Sintesis *carbon nanowires* dibagi menjadi 4 metode, yaitu pertumbuhan spontan, sintesis *template-based*, *electro-spinning*, dan litografi (Yavuzcetin, n.d.).

2.2.5 Carbon Nanotubes (CNT)

CNT ditemukan oleh Sumio Ijima pada tahun 1991 dengan metode *carbon-arc discharge* dimana metode ini digunakan juga untuk membuat *fullerene* (Paradise & Goswami, 2006). *Carbon nanotubes* tersusun dari atom karbon hibridisasi sp^2 yang membentuk cincin heksagonal yang saling berikatan sehingga membentuk lembaran *graphene* (Sharma et al., 2015). *Carbon nanotube* merupakan *graphene* yang menggulung membentuk suatu silinder (Sharma et al., 2015). CNT yang sempurna mempunyai karbon yang terikat pada kisi heksagonal kecuali pada ujungnya, sedangkan ketidaksempurnaan CNT menunjukkan struktur pentagonal, heptagonal, dan ketidaksempurnaan lainnya pada dinding samping (De Volder et al., 2013). CNT dapat bersifat logam (konduktor termal dan konduktor listrik yang baik) atau bersifat semikonduktor tergantung dari struktur geometri CNT (Dresselhaus et al., 2001). CNT banyak dimanfaatkan untuk bahan penyimpan hidrogen dan elektroda pada baterai superkapasitor (Sharma et al., 2015). Struktur geometri CNT dapat ditentukan dengan menggunakan vektor kiral. Vektor kiral merupakan vektor yang menunjukkan arah gulungan lembaran *graphene* (Dresselhaus et al., 2001). Arah gulungan tersebut tergantung pada variabel (n,m) yang merupakan suatu bilangan bulat. Selain dengan vektor kiral, arah gulungan *graphene* juga ditentukan dengan sudut kiral (θ) (Dresselhaus et al., 2001).

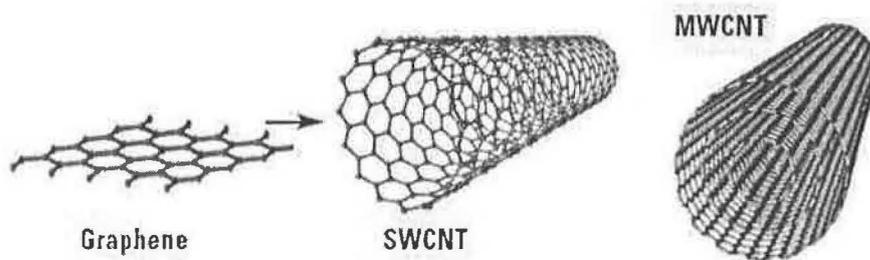


Gambar 2.9 Arah gulungan *graphene* membentuk CNT (Dresselhaus et al., 2001)

Berdasarkan penggulungan lembaran *graphene* (vektor kiral dan sudut kiral), CNT dapat dibedakan menjadi 3 jenis yaitu *zigzag*, *armchair*, dan *nanotube chiral* (Dresselhaus et al., 2001). Pada gambar 2.9 dapat dilihat CNT bentuk *zigzag* dapat dibentuk pada $(n,0)$ dengan sudut kiral $\theta=0^\circ$, CNT bentuk *armchair* dapat dibentuk pada (n,n) dengan sudut kiral $\theta=30^\circ$. Sedangkan CNT bentuk *nanotube chiral* dapat dibentuk pada (n,m) dengan sudut kiral $0^\circ < \theta < 30^\circ$ (Dresselhaus et al., 2001). Pada gambar 2.9 juga dapat dilihat bahwa CNT dengan bentuk tertentu akan memiliki sifat yang berbeda dengan bentuk lainnya. CNT bentuk *armchair* memiliki sifat logam (konduktor termal dan konduktor listrik yang baik). CNT bentuk *zigzag* dan *nanotube* bisa memiliki sifat metal atau semikonduktor (Dresselhaus et al., 2001).

Berdasarkan jumlah dindingnya, CNT dapat dibedakan menjadi 2 jenis, yaitu *single walled carbon nanotube* (SWCNT) dan *multi walled carbon nanotubes* (MWCNT) (Kruger, 2010) (gambar disajikan pada gambar 2.10). Diameter SWCNT berada pada rentang 1-2 nm (Hodkiewicz, 2010). SWCNT terdiri dari lembaran *graphene* tunggal yang digulung hingga menjadi silinder berongga (Kruger, 2010). Sifat elektrik SWCNT dapat berupa metal atau semikonduktor tergantung dari kiralitas (Vajtai, 2013). Sifat unik lainnya yang dimiliki SWCNT adalah kuat, *defect* yang dihasilkan sedikit, dan lebih konduktif daripada MWCNT pada diameter yang hampir sama (Acton, 2013). SWCNT dapat diproduksi dengan metode *arc discharge methods*, *laser ablation*, *the HiPCo process*, *pyrolysis*, dan *chemical vapor deposition* (CVD) (Kruger, 2010). *Yield* SWCNT dipengaruhi oleh beberapa variasi parameter seperti katalis logam yang digunakan, *metal loadings*, jenis *support*, temperatur reaksi, dan waktu reaksi (Donaldson et al., 2012).

MWCNT terdiri dari susunan konsentris SWCNT (mengandung kelipatan gulungan lapisan grafit yang membentuk tabung) dengan diameter yang berbeda (Aqel et al., 2012), diameter bagian dalam sekitar 1-3 nm dan diameter terluar sekitar 10 nm (Kumar & Kumbhat, 2016). Pada MWCNT, lapisan- lapisan CNT memiliki jarak antar lapisan berkisar pada 0.3444 ± 0.001 nm (Kumar & Kumbhat, 2016). MWCNT dapat diproduksi dengan metode *arc discharge methods*, *laser ablation*, CVD, dan *decomposition of hydrocarbons-pyrolytic methods* (Kruger, 2010).



Gambar 2.10 SWCNT dan MWCNT (Hodkiewicz, 2010)

2.3 Metode Sintesis

Sintesis material karbon nano dapat dilakukan dengan banyak metode, antara lain *arc discharge*, *laser ablation*, *chemical vapor deposition*, dan *nebulized spray pyrolysis* (Liu et al., 2014) (Arie & Konstantia, 2016). Keempat metode tersebut akan dijelaskan lebih lanjut pada bagian ini.

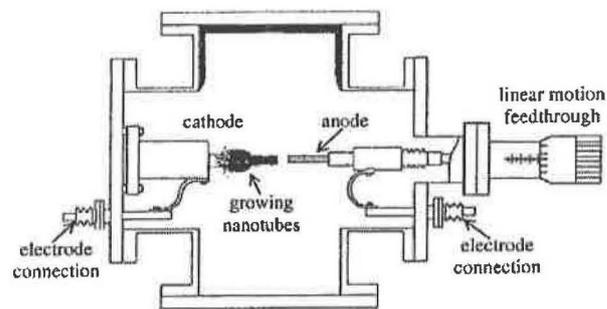
2.3.1 *Arc Discharge*

Sintesis karbon nano dengan metode *arc discharge* dilakukan dengan menggunakan dua elektroda grafit yang diletakan berdekatan di dalam suatu tempat yang berisi gas inert seperti helium dengan tekanan sekitar 500 torr (Liu et al., 2014). Kemurnian dan perolehan CNT dipengaruhi oleh tekanan gas inert (Donaldson et al., 2012). Metode ini dapat memproduksi SWCNT atau MWCNT. Untuk sintesis SWCNT, anoda dibor dan diisi dengan katalis logam, dan bubuk grafit (Donaldson et al., 2012). Dua batang grafit digunakan sebagai elektroda, elektroda anoda yang diameternya lebih kecil daripada elektroda katoda bergerak menuju elektroda katoda yang tidak bergerak hingga jarak antara keduanya cukup kecil untuk arus dapat melewati elektroda dan membentuk plasma dengan suhu rata-rata antara 3500–4000°C (Donaldson et al., 2012). Kedua elektroda grafit tersebut masing-masing memiliki diameter 5-20 nm dengan jarak antara elektroda 1 mm (Liu et al., 2014).

Proses sintesis karbon nano terjadi dengan mengalirkan arus searah sebesar 50-120 A dan tegangan sebesar 20-25 V sehingga terjadi perubahan temperatur yang sangat tinggi di antara kedua ujung elektroda tersebut (Liu et al., 2014). Adanya perubahan temperatur menyebabkan terjadinya penguapan karbon pada ujung elektroda (anoda). Hasil penguapan tersebut kemudian akan terkondensasi kembali membentuk suatu lapisan karbon nano pada ujung elektroda lainnya (katoda) yang memiliki temperatur lebih rendah (Liu et al.,

2014). Untuk menjaga arus yang mengalir antara elektroda, anoda terus bergerak secara konstan untuk menjaga jarak yang konstan. Dengan mengontrol tegangan dan pemisahan antara kedua elektroda, maka fluktuasi dari plasma dapat berkurang (Donaldson et al., 2012). Pada metode ini umumnya digunakan katalis yang diletakan pada anoda berupa logam transisi seperti Fe, Co, dan Ni (Liu et al., 2014).

Kelebihan dari metode ini adalah mudah untuk mensintesis material karbon nano terutama SWCNT dan MWCNT dan biaya yang diperlukan tidak terlalu mahal (Liu et al., 2014). Kekurangan dari metode ini adalah karbon nano yang di hasilkan memiliki kemurnian yang rendah karena banyak pengotor yang terbentuk (Liu et al., 2014) sehingga membutuhkan tahap pemurnian setelah karbon nano terbentuk (Vajtai, 2013). Selain itu, jumlah material karbon nano yang dapat dihasilkan dengan metode ini terbatas karena grafit yang merupakan sumber karbon yang diletakan pada elektroda juga terbatas (Thostenson et al., 2001) sehingga sulit untuk di *scale up* ke skala industri (Vajtai, 2013). Rangkaian alat metode *arc discharge* disajikan dalam gambar 2.11.

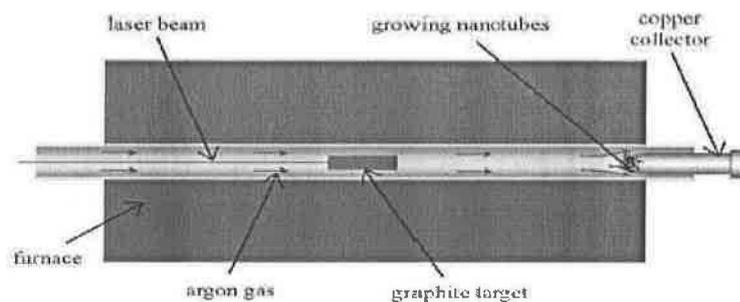


Gambar 2.11 Rangkaian alat metode *arc discharge* (Thostenson et al., 2001)

2.3.2 Laser Ablation

Metode *laser ablation* memiliki prinsip yang sama dengan metode *arc discharge* yaitu melibatkan kondensasi karbon yang terbentuk dari penguapan grafit (Liu et al., 2014). Pada metode ini, grafit diletakan dalam sebuah tabung kaca yang berada dalam suatu tungku bertemperatur tinggi (800-1500°C) (Liu et al., 2014). Setelah grafit teruapkan, gas inert seperti gas argon pada tekanan rendah (500 torr) dialirkan. Gas tersebut akan membawa uap grafit ke suatu wadah penampung yang memiliki temperatur lebih rendah sehingga uap grafit tersebut dapat terkondensasi (Liu et al., 2014). Skema alat metode *laser ablation* disajikan dalam gambar 2.12.

Perbedaan antara metode *laser ablation* dan *arc discharge* adalah pemicu adanya temperatur tinggi dalam tungku atau wadah sintesis. Pada metode *arc discharge* temperatur tinggi dipicu oleh adanya arus listrik, sedangkan pada metode *laser ablation* temperatur tinggi dipicu oleh laser (Liu et al., 2014). Keunggulan dari metode ini adalah material karbon nano yang dihasilkan memiliki kualitas yang baik (Vajtai, 2013) dan membentuk SWCNT dengan kemurnian tinggi (Yan et al., 2015). Kelemahan dari metode ini adalah karbon nano yang dihasilkan memiliki kemurnian yang rendah sehingga membutuhkan tahap pemurnian setelah proses sintesis (Thostenson et al., 2001), produk yang dihasilkan memiliki jumlah yang sedikit karena sumber karbonnya juga terbatas (Thostenson et al., 2001), sulit untuk di *scale up* dan mahal (Yan et al., 2015).



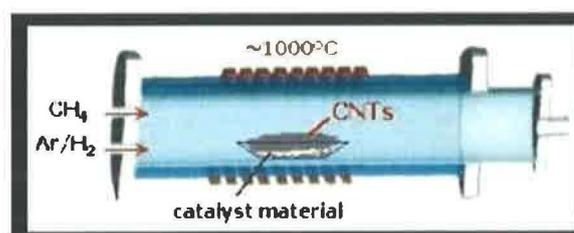
Gambar 2.12 Rangkaian alat *laser ablation* (Thostenson et al., 2001)

2.3.3 Chemical Vapor Deposition (CVD)

Prinsip dari metode CVD adalah mengalirkan sumber karbon dan gas inert ke dalam suatu *furnance* yang di dalamnya sudah terdapat substrat. Setelah itu karbon akan terdeposisi di atas permukaan substrat (Vajtai, 2013). Sumber karbon yang digunakan pada metode ini dapat berupa gas seperti metana, etanol, dan heksana (Liu et al., 2014) dan cair seperti benzena (Parshotam, 2007). Temperatur operasi pada metode ini tidak terlalu tinggi, yaitu 600°C - 1000°C (Liu et al., 2014). Fungsi dari pemanasan ini adalah untuk membantu memecah sumber karbon menjadi atom atom karbon yang kemudian akan terdeposisi di atas substrat (Vajtai, 2013). Pada metode CVD, penggunaan katalis dapat dilakukan dengan 2 cara yaitu dengan mencampurkan katalis secara langsung ke dalam sumber karbon (*floating catalyst*) atau dengan cara katalis di impregnasi ke dalam substrat (Vajtai, 2013). Metode ini menggunakan katalis logam transisi seperti Fe, Ni, dan Co untuk memecah umpan gas hidrokarbon menjadi hidrogen dan karbon, lalu diikuti oleh karbon yang larut dalam partikel nano logam hingga kelarutan karbon mencapai batas dan

karbon terlarut mengendap dan berkembang membentuk jaringan kristal silinder (Yan et al., 2015). Metode CVD bergantung pada kondisi operasi seperti temperatur dan tekanan operasi, volume dan konsentrasi hidrokarbon, ukuran dan *pretreatment* katalis logam, dan waktu reaksi (Paradise & Goswami, 2006). Rangkaian alat metode *Chemical Vapor Deposition* disajikan pada gambar 2.13.

Kelebihan dari metode CVD adalah proses dapat berlangsung secara kontinu, temperatur operasi relatif rendah apabila dibandingkan dengan *arc discharge* dan *laser ablation*, proses dapat di *scale up* (Vajtai, 2013), mudah untuk meningkatkan produksi massa, kemampuan dalam menyesuaikan struktur dan morfologi karbon nano, parameter reaksi lebih terkontrol, harga produksi murah, dan menghasilkan karbon nano dengan perolehan dan kemurnian yang tinggi. Kekurangan dari metode ini adalah material karbon nano yang dihasilkan memiliki kualitas yang kurang baik serta kemurnian yang rendah karena terdapat banyak kontaminan. Seringkali terdapat cacat pada dinding karbon nano yang dihasilkan (Vajtai, 2013) dan ditutupi karbon amorf yang merupakan produk samping dekomposisi termal hidrokarbon (Donaldson et al., 2012). Kotoran selain karbon amorf yang dapat terbentuk selama proses diantaranya senyawa grafit, *fullerene*, arang, dan nanopartikel logam, karena itu proses pemurnian sangat dibutuhkan dengan cara perlakuan oksidatif dalam fasa gas, fasa cair, perlakuan asam, filtrasi mikro, perlakuan termal, dan metode *ultrasound* (Paradise & Goswami, 2006).



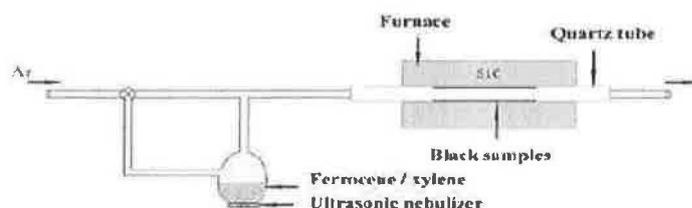
Gambar 2.13 Rangkaian alat metode *chemical vapor deposition* (Vuria, 2016)

2.3.4 *Nebulized Spray Pyrolysis*

Metode *nebulized spray pyrolysis* merupakan variasi dari metode *floating catalyst CVD* yang menggunakan radiasi *ultra-high frequency* untuk memproduksi *mist* (uap yang mengandung fasa air) dari reaktan yang kemudian akan dimasukkan ke dalam *furnace* bersuhu tinggi oleh gas pembawa (Arie & Konstantia, 2016). Hal ini dicapai dengan

menempatkan campuran reaksi ke dalam bejana yang menduduki transduser *piezo-electric* yang terhubung ke generator frekuensi. Gas pembawa inert yang dapat digunakan dalam proses pembuatan CNT yaitu N_2 (Afre et al., 2006) dan argon (Abdullah et al., 2004). Heteroatom pada nitrogen dapat memodifikasi karakteristik tabung (Coville et al., 2011). Heteroatom nitrogen dapat ditambahkan selama reaksi sintesis (menggunakan NH_3) atau dengan menambahkan atom nitrogen ke sumber karbon atau ligan katalis (jika menggunakan *floating catalyst*) (Coville et al., 2011). Penggabungan atom nitrogen mendukung pembentukan *pentagons* dan *heptagons* dan meningkatkan reaktivitas atom-atom karbon (Coville et al., 2011).

Prinsip dari metode *nebulized spray pyrolysis* adalah menebulisasi karbon prekursor berfasa *liquid* sehingga terbentuk butiran-butiran *liquid* yang berukuran sangat kecil (*droplet*) (Suslick & Kenneth, 2010) dalam ukuran mikro yang terisolasi (Bang & Suslick, 2010). Kemudian, butiran-butiran tersebut dibawa oleh aliran gas inert menuju *tube* yang terdapat di dalam *furnace*. *Tube* tersebut berfungsi sebagai tempat tumbuhnya material karbon nano yang akan disintesis. (Suslick & Kenneth, 2010). Berikut ini adalah skema rangkaian alat metode *nebulized spray pyrolysis*:



Gambar 2.14 Skema alat metode *nebulized spray pyrolysis* (Yang et al., 2011)

Pada umumnya *spray pyrolysis* melibatkan dekomposisi termal aerosol yang dihasilkan dari *nebulizer*. Jenis *nebulizer* yaitu *ultrasonic nebulizer* lebih diminati dibandingkan jenis lain seperti *pneumatic nebulizer* dan *electrostatic nebulizer* (Kodas & Smith, 1999) karena efisiensi energi dalam menghasilkan aerosol, terjangkau, dan kecepatan aerosol awal rendah. Keuntungan dari metode *ultrasonic nebulizer spray pyrolysis* dibandingkan dengan metode lainnya yaitu produksi partikel bola dalam ukuran mikro atau submikro, kemurnian produk yang tinggi, operasi dapat dilakukan secara kontinu, dan komposisi yang mudah dikendalikan (Bang & Suslick, 2010) (Kodas & Smith, 1999). Selain itu pada metode ini parameter seperti laju alir gas pembawa,

konsentrasi katalis, dan temperatur *pyrolysis* dapat diubah agar distribusi diameter dan kualitas produk CNT dapat dikontrol (Dai, 2006).

Proses nebulisasi dilakukan dengan cara menggetarkan sumber karbon dengan menggunakan gelombang ultrasonik. Penggunaan gelombang ultrasonik dikarenakan gelombang ultrasonik memiliki efisiensi energi yang tinggi (Kodas & Smith, 1999). Gelombang ultrasonik yang digunakan pada metode *nebulized spray pyrolysis* memiliki frekuensi yang tinggi yaitu sekitar 1-2 MHz (Suslick & Kenneth, 2010). Pada saat gelombang ultrasonik di pancarkan ke sumber karbon maka akan terbentuk tegangan permukaan antara cairan dengan celah antar fasa cair dan gas (Suslick & Kenneth, 2010). Hal ini akan menyebabkan terbentuk gelombang pada permukaan sumber karbon yang terdiri atas puncak dan palung. Apabila amplitudo dari gelombang tersebut cukup besar maka partikel partikel pada bagian puncak akan lepas dan membentuk butiran-butiran *liquid (droplet)* (Suslick & Kenneth, 2010). Ukuran dari *droplet* yang terbentuk dapat di atur dengan mengubah beberapa parameter sesuai dengan persamaan 2.1 (Suslick & Kenneth, 2010):

$$D_{droplet} = 0,34 \left(\frac{8 \cdot \gamma \cdot \pi}{\rho \cdot f^2} \right)^{1/3} \quad (2.1)$$

Keterangan :

D = diameter *droplet* (m)

γ = tegangan permukaan (N m⁻¹)

ρ = densitas larutan (kg m⁻³)

f = frekuensi ultrasonik (MHz)

Pada persamaan 2.1, hanya menjelaskan hubungan diameter *droplet* dengan densitas larutan, tegangan permukaan, dan frekuensi. Hubungan antara diameter *droplet* dengan viskositas larutan dan laju alir volumetrik dinyatakan dalam persamaan 2.2 berikut ini (Rajan & Pandit, 2000).

$$D_{droplet} = 31,7 \left(\frac{\gamma}{\rho} \right)^{0,354} \cdot \mu^{0,303} \cdot Q^{0,139} \quad (2.2)$$

Keterangan :

D = diameter *droplet* (m)

γ = tegangan permukaan (N m⁻¹)

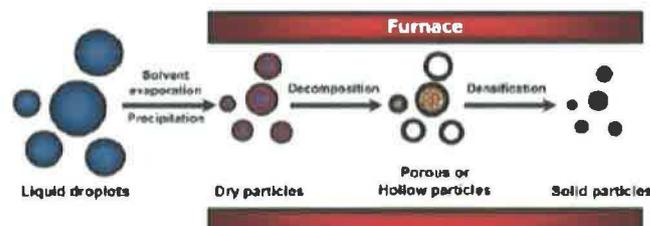
ρ = densitas larutan (kg m⁻³)

μ = viskositas (cP)

Q = laju alir volumetrik (lpm)

Ukuran dari *droplet* tentunya akan berpengaruh pada proses nebulisasi, apabila ukuran *droplet* besar maka akan sulit untuk ternebulisasi (Rajan & Pandit, 2000). Umumnya, syarat suatu karbon prekursor dapat ternebulisasi adalah karbon prekursor tersebut harus memiliki tegangan permukaan dan viskositas yang rendah (Ashgriz, 2011). Rendahnya tegangan permukaan berarti gaya tarik ke bawah pada permukaan cairan lebih kecil sehingga partikel pada permukaan cairan lebih mudah untuk lepas saat digetarkan dengan gelombang ultrasonik (Ashgriz, 2011). Viskositas yang rendah menyebabkan ikatan antar partikel pada cairan lebih lemah sehingga partikel cairan lebih mudah bergerak (Ashgriz, 2011).

Setelah *droplet* terbentuk maka *droplet* akan di bawa oleh aliran gas inert (contohnya gas Ar dan N_2) (Suslick & Kenneth, 2010) menuju *tube* yang terdapat di dalam *furnace*. Pada proses ini *droplet* mengalami pemanasan sehingga partikel akan terdekomposisi dan membentuk material karbon nano (Suslick & Kenneth, 2010). Skema proses yang terjadi disajikan dalam gambar 2.15. Jenis material karbon nano yang terbentuk pada umumnya tidak dapat diketahui, namun terdapat beberapa faktor yang akan mempengaruhi pembentukan material karbon nano seperti laju alir gas inert yang akan mempengaruhi waktu tinggal partikel *droplet* di *furnace* dan kelarutan dari karbon prekursor yang digunakan (Kodas & Smith, 1999).



Gambar 2.15 Skema proses *droplet* di dalam *furnace* (Kodas & Smith, 1999)

Kelebihan dari metode *nebulized spray pyrolysis* ini adalah proses dapat berlangsung secara kontinu sehingga dapat di *scale up*, mudah dalam pengendalian, dan hasil yang didapat memiliki kemurnian yang tinggi (Suslick & Kenneth, 2010). Namun kekurangan dari metode ini adalah terbatasnya karbon prekursor yang dapat digunakan karena tidak semua karbon prekursor dapat dinebulisasi (Suslick & Kenneth, 2010). Pada metode *nebulized spray pyrolysis*, umumnya material karbon nano ditumbuhkan di atas substrat yang berada di *quartz tube* yang terletak di dalam *furnace* (Suslick & Kenneth, 2010) (Arie & Konstantia, 2016) (Arie et al., 2015). Namun, pada penelitian ini material karbon nano disintesis dengan deposisi secara langsung pada dinding *tube*/reaktor. Setelah

material karbon nano tersintesis pada dinding reaktor, karbon nano tersebut ditarik dengan menggunakan selongsong *stainless steel*.

2.4 Sumber Karbon

Material karbon nano dapat disintesis dari berbagai jenis karbon prekursor baik yang berfasa *solid*, *liquid* ataupun gas. Pada metode *nebulized spray pyrolysis*, karbon prekursor yang digunakan harus berfasa *liquid*. Terdapat beberapa karbon prekursor yang umum digunakan baik rantai karbon rendah seperti n-heksana, benzena, xylene (SÁRKÖZI et al., 2008), dan senyawa alkohol alifatik (etanol, methanol, propanol, atau butanol) (Ordoñez-Casanova et al., 2013), dan rantai karbon panjang seperti *turpentine oil* (Afre et al., 2006) dan kerosin (Arie et al., 2015). Pada penelitian ini, sumber karbon yang akan digunakan adalah minyak goreng. Minyak goreng tersusun atas asam lemak jenuh seperti asam stearat ($C_{18}H_{36}O_2$) dan asam palmitat ($C_{16}H_{32}O_2$) dan asam lemak tidak jenuh seperti asam linoleat dan asam oleat (Suciningtyas, 2015).

Pada umumnya minyak goreng berasal dari kelapa sawit. Hal ini dikarenakan kelapa sawit banyak mengandung lemak esensial yang tidak dapat disintesis oleh tubuh (Suciningtyas, 2015). Minyak kelapa sawit termasuk asam lemak tak jenuh karena memiliki ikatan rangkap sehingga sifatnya stabil (Suciningtyas, 2015). Apabila setelah digunakan untuk menggoreng, maka ikatan rangkap pada minyak kelapa sawit akan terputus dan akan terbentuk asam lemak jenuh (Suciningtyas, 2015) Sifat fisik dari minyak kelapa sawit disajikan pada tabel 2.2.

Tabel 2.2 Sifat fisik dan kimia minyak kelapa sawit (Ketaren, 1986)

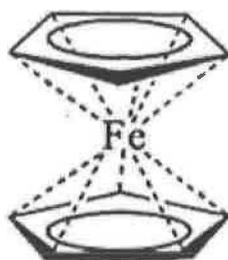
Sifat fisik dan Kimia	Minyak Kelapa Sawit
Titik Cair (C)	21-24
Densitas (gram/cm ³)	0.900
Bilangan Penyabunan	224-249
Bilangan Iod	14.5-19
Indeks Bias D40 C	1.4565-1.4585

2.5 Katalis

Katalis berperan sangat penting untuk nukleasi karbon nano (Afre et al., 2006). Ukuran partikel katalis merupakan faktor yang penting bagi hasil akhir produk CNT karena mempengaruhi diameter CNT, baik SWCNT maupun MWCT (Afre et al., 2006). Ukuran

partikel katalis yang besar telah di klaim tidak efektif untuk membuat CNT, sedangkan ukuran partikel katalis yang kecil lebih menarik perhatian karena dapat memproduksi CNT dengan diameter yang kecil seperti yang diinginkan (Yu et al., 2004). Katalis memfasilitasi dekomposisi termal hidrokarbon sehingga diperoleh atom karbon dan gugus kecil dalam fasa gas yang dapat berfungsi sebagai blok bangunan untuk pertumbuhan karbon nano. Katalis yang digunakan dalam mensintesis CNT, CNH, dan CNS umumnya berasal dari logam transisi seperti Fe, Ni, dan Co (Yang et al., 2012). Ketiga komponen katalis tersebut merupakan katalis yang efektif digunakan dibandingkan unsur-unsur logam lainnya. Hal ini disebabkan karena unsur-unsur logam lain memiliki kelarutan yang rendah pada karbon (Yang et al., 2012). Selain itu katalis golongan logam transisi juga menghasilkan efisiensi yang tinggi dalam pembentukan *low-diameter* dan CNT lengkungan tinggi seperti SWNT (Siva & Kumar, 2011).

Fungsi dari penggunaan katalis adalah untuk membantu memecah (mendekomposisi) molekul molekul karbon prekursor sehingga menjadi atom atom karbonnya (Liu et al., 2014) kemudian berdifusi kedalam permukaan dan pusat aktif logam katalis (Moisala et al., 2003). *Organometallocene* padat seperti *ferrocene*, *cobaltocene*, dan *nickelocene* juga sering digunakan sebagai katalis untuk sintesis CNT karena dapat mendekomposisi hidrokarbon dengan lebih efisien (Siva & Kumar, 2011). Pada penelitian ini katalis yang digunakan adalah *Ferrocene* dengan rumus molekul $\text{Fe}(\eta^5\text{-C}_5\text{H}_5)_2$ (Elias, 2002). Struktur molekul *ferrocene* disajikan dalam gambar 2.16 berikut.



Gambar 2.16 Struktur molekul *ferrocene* (Elias, 2002)

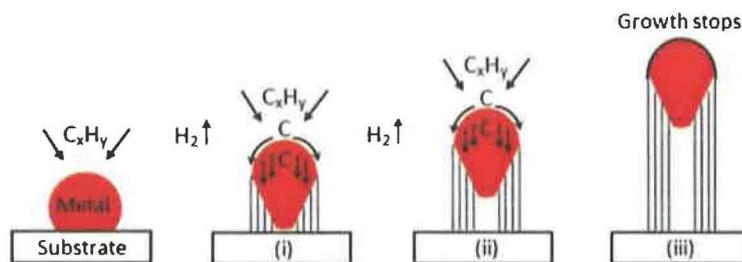
Ferrocene digunakan sebagai katalis karena memiliki kelarutan yang tinggi pada pelarut organik (Klingeler & Sim, 2011). Selain itu, *ferrocene* memiliki kemampuan logam besi untuk mensintesis material karbon nano dengan diameter yang relatif kecil (Zou et al., 2004). *Ferrocene* dikenal juga sebagai besi disiklopentadienil atau bis(siklopentadienil).

Berat molekul *ferrocene* sebesar 186.04, titik didih pada suhu 249°C, titik leleh pada suhu 173-174°C, dan tidak terdekomposisi di bawah suhu 400°C. Ligan siklopentadienil (C_5H_5) berikatan dengan besi, symbol η menunjukkan jumlah cincin atom karbon yang berikatan dengan besi (Elias, 2002). *ferrocene* merupakan jenis dari *metallocene* yang paling stabil dibandingkan jenis lainnya (Elias, 2002). Katalis *ferrocene* digunakan dalam penelitian ini karena katalis ini dapat larut dalam larutan minyak dan heksana karena sifatnya yang polar.

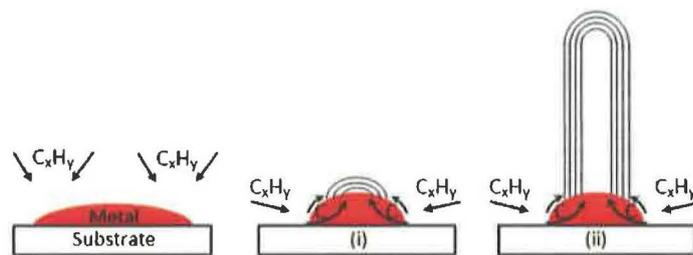
Proses pengkontakkan katalis dengan karbon prekursor dapat dilakukan dengan 2 cara yaitu dengan pengkontakkan langsung (*floating catalyst*) dan dengan cara katalis diimpregnasikan dengan substrat (Moisala et al., 2003). Proses pengkontakkan langsung antara katalis dengan sumber karbon dilakukan dengan cara mencampurkan katalis dengan sumber karbon sebelum sumber karbon tersebut di nebulisasi (Moisala et al., 2003). Keuntungan dari pengontakan langsung ini adalah reaksi dapat berlangsung secara kontinu karena setiap *droplet* yang melewati *tube* yang berada dalam *furnace* telah bercampur dengan katalis. Kekurangan dari cara ini adalah katalis sulit dipisahkan setelah digunakan (Su et al., 2006). Proses pengkontakkan dengan cara katalis diimpregnasikan dengan substrat dilakukan dengan meletakan dan mencampurkan katalis di permukaan substrat. Setelah itu, *droplet* yang di alirkan oleh gas inert ke *tube* akan mengalami kontak dengan katalis yang sudah berada di substrat. Keuntungan cara ini adalah proses pemisahan katalis setelah digunakan dapat lebih mudah namun kekurangannya adalah proses tidak berlangsung secara kontinu sehingga sulit untuk di *scale up* (Su et al., 2006).

Berdasarkan mekanisme pertumbuhan material karbon nano pada permukaan katalis, terdapat 2 jenis mekanisme yaitu *tip growth* dan *root growth/base growth* (Parshotam, 2007). Kedua mekanisme tersebut didasari pada kekuatan ikatan antara katalis dengan substrat (Siva & Kumar, 2011). Pada mekanisme *tip growth*, setelah karbon prekursor terdekomposisi di permukaan katalis, karbon akan berdifusi ke dalam permukaan katalis sampai mencapai keadaan jenuh. Setelah itu material karbon nano akan tumbuh dan mengangkat katalis karena kekuatan ikatan katalis dengan substrat lemah (Parshotam, 2007). Pada mekanisme *root growth/ base growth*, sama halnya dengan mekanisme *tip growth*, karbon terdekomposisi di permukaan katalis dan berdifusi ke dalam permukaan katalis sampai mencapai keadaan jenuh. Namun pada mekanisme ini, ikatan antara katalis dengan substrat kuat sehingga ketika material karbon nano tumbuh (keluar dari bagian atas logam), katalis tidak ikut terangkat ke atas (Parshotam, 2007). Pada awalnya kristal karbon yang keluar berbentuk kubah setengah bola yang kemudian meluas hingga membentuk

silinder grafit (Siva & Kumar, 2011). Dekomposisi hidrokarbon selanjutnya berlangsung pada permukaan pinggiran yang lebih rendah dari logam, dan karbon terlarut berdifusi ke atas (Siva & Kumar, 2011). Proses kedua mekanisme disajikan dalam gambar 2.17 dan 2.18. Pada penelitian ini, pertumbuhan material karbon nano tidak dilakukan di atas substrat namun langsung ditumbuhkan pada bagian dinding *tube* atau reaktor yang digunakan. Hal ini menjadi salah satu pemicu mekanisme pertumbuhan yang akan terjadi pada penelitian ini adalah mekanisme *tip growth*.



Gambar 2.17 Mekanisme *tip growth* (Siva & Kumar, 2011)



Gambar 2.18 Mekanisme *base growth* (Siva & Kumar, 2011)

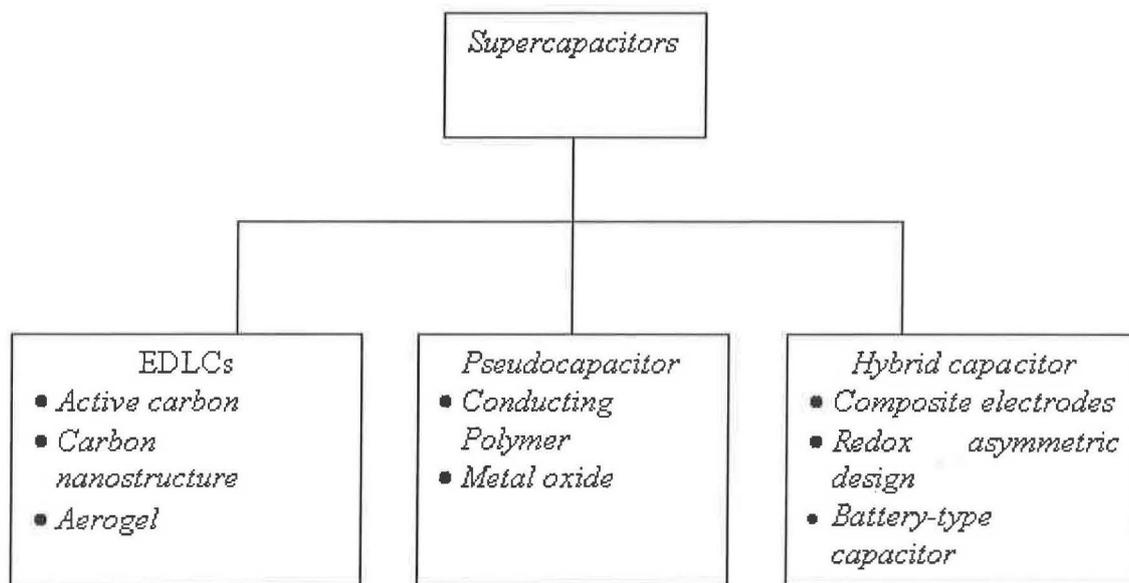
2.6 Superkapasitor Berbasis Karbon Nano

Energi merupakan hal yang sangat penting untuk keberlangsungan kualitas hidup manusia dan setiap sektor ekonomi modern. Di estimasikan pada tahun 2050 kebutuhan energi akan meningkat dua kali lipat, hal ini mendorong para peneliti untuk mengembangkan sumber energi terbarukan dan bebas polusi (misalnya tenaga surya, tenaga angin, *water splitting*). Sebagai energi yang tidak kontinu (tenaga surya, tenaga angin) dan terbatas (air), ada kebutuhan mendesak untuk mengembangkan system penyimpanan energi yang lebih maju seperti superkapasitor untuk efisiensi penyimpanan tenaga listrik di segala area dari tenaga surya hingga angin untuk pemakaian elektronik.

Superkapasitor juga diketahui sebagai *ultracapacitor* atau *electrochemical double-layer capacitors* (EDLCs) merupakan hasil dari evolusi teknologi dari kapasitor elektrolitik tradisional. Superkapasitor merupakan perangkat penyimpanan energi elektrokimia yang mengkombinasi kapabilitas penyimpanan energi yang tinggi dari baterai konvensional dengan kapabilitas pelepasan energi yang tinggi dari kapasitor konvensional (Chen & Dai, 2013). Superkapasitor memiliki keunggulan diantaranya kerapatan daya yang tinggi, siklus hidup yang lama, pengisian daya cepat, efisiensi tinggi, dan dalam pengisian dan pengosongan tidak akan mempengaruhi kinerja dan waktu hidup (Shen et al., 2016). Superkapasitor terdiri dari dua elektroda pada sisi kedua kompartemen (*double layer*) dari elektrolit, elektroda positif dan negatif dari superkapasitor terbuat dari bahan yang sama (Kalyani & Anitha, 2013). Superkapasitor terdiri dari tiga komponen utama yaitu elektroda, elektrolit, dan pemisah (*separator*) (Chen & Dai, 2013). Mekanisme penyimpanan muatan pada superkapasitor didominasi oleh efek pengisian pada *double layer*. Sifat fisik dari elektroda dan elektrolit merupakan faktor yang mempengaruhi performa superkapasitor secara keseluruhan (Chen & Dai, 2013). Namun demikian, elektroda adalah satu komponen yang paling penting untuk *charge storage/delivery*, dan berperan penting dalam menentukan energi dan daya densitas dari sebuah superkapasitor (Chen & Dai, 2013).

Tiga kategori bahan elektroda yang biasa digunakan untuk kapasitor yaitu bahan berbasis karbon, logam transisi oksida, dan *conducting polymer* (Kalyani & Anitha, 2013). Contoh dari bahan berbasis karbon adalah karbon aktif, CNT, karbon ukuran nano, grafit, karbon aerogel, dan karbon *nanofibers* (Kalyani & Anitha, 2013). Pada saat ini, material karbon nano dianggap memiliki peran yang signifikan untuk penyimpanan dan konversi energi. Material karbon nano telah memfasilitasi penelitian dan pengembangan teknologi energi. Material karbon nano memiliki beberapa ukuran yang tidak biasa, *surface-dependent* (seperti morfologi, listrik, optik, dan mekanik), aksesibilitas, kemampuan proses mudah, tidak beracun, stabilitas kimia tinggi, dan rentang temperatur luas yang berguna untuk meningkatkan konversi energi dan performa penyimpanan (Kalyani & Anitha, 2013) (Dai et al., 2012).

Berdasarkan mekanisme penyimpanan energi, superkapasitor dibagi menjadi 3 tipe yaitu *electrochemical double-layer capacitors* (EDLCs), *pseudocapacitor*, dan *hybrid capacitor* (disajikan pada gambar 2.19).



Gambar 2.19 Tipe superkapasitor (Shen et al., 2016)

Pada EDLCs energi disimpan secara elektrostatis atau *non-faradaic* dan tidak ada transfer muatan antara elektroda dan elektrolit. Ketika diberi tegangan, muatan terakumulasi pada permukaan elektroda. Ion dengan muatan yang berbeda di elektrolit berdifusi ke permukaan elektroda untuk menjaga kenetralan. Energi yang terbentuk disimpan di *interface* (disebut kapasitor) antara elektroda dan elektrolit. Permukaan elektroda pada EDLC merupakan faktor yang sangat penting dalam hal kapasitansi (kemampuan menyimpan energi listrik). Elektroda yang biasa digunakan pada EDLCs adalah karbon aktif, CNT, *carbon aerogel*, *templated porous carbon*, *active carbon nanofibers*, dan *active carbon fabrics*.

Berbeda dengan EDLC, *pseudocapacitors* menggunakan proses *faradaic* untuk menyimpan energi, dan reaksi redoks pun terlibat dalam proses ini. Proses *faradaic* dibagi menjadi 3 tipe, yaitu *reversible adsorption*, reaksi redoks dekat permukaan elektroda, dan *reversible electrochemical doping-dedoping* pada elektroda. Reaksi *faradaic* memicu transfer muatan sepanjang *interface* seperti baterai. Kapasitansi dari *pseudocapacitor* lebih besar dari EDLCs, namun mekanisme penyimpanan energi dengan *faradaic* lebih lambat daripada proses *non-faradaic* pada EDLCs. Bahan elektroda paling terkenal pada *pseudocapacitors* yaitu *metal oxides* dan *conducting polymers*. Transisi *metal oxides* memiliki konduktivitas yang baik, laju kapabilitas tinggi, reversibilitas elektrokimia sangat baik, dan relatif memiliki masa pakai yang lama. Akan tetapi penggunaan bahan ini terbatas karena reaksi yang *irreversible*, *insufficient conductivity*, *dissolution* (MnO_2), dan

harga yang mahal serta beracun (RuO_2). *Conducting polymer* digunakan sebagai alternatif bahan elektroda karena harga bahan tidak begitu mahal dan mudah untuk di sintesis. Dengan menggunakan *conducting polymers, pseudocapacitors* dapat mencapai kapasitansi yang relatif tinggi dan konduktivitas yang baik, akan tetapi stabilitasnya kurang baik.

Hybrid capacitor terintegrasi dari proses *faradaic* maupun *non-faradaic* untuk penyimpanan energi, hal ini untuk mengatasi kekurangan dari EDLCs dan *pseudocapacitors* dan untuk mencapai kinerja yang baik. *Hybrid capacitors* tradisional terdiri dari dua konfigurasi, yaitu komposit dan asimetrik. Elektroda komposit melibatkan kombinasi dari karbon. Bahan dasar baik dengan oksida logam maupun *conducting polymer*, menggabungkan reaksi *faradaic* dan *non-faradaic* pada elektroda tunggal. Bahan berbasis karbon dapat mempengaruhi luas permukaan sehingga menjadi lebih besar dan hal ini berdampak pada peningkatan kontak antar *pseudocapacitive* dan elektrolit dan meningkatkan kapasitas elektroda komposit melalui reaksi *faradaic*. *Hybrid capacitor* asimetrik mengintegrasikan elektroda EDLCs (memberikan kerapatan daya yang tinggi) dan elektroda *pseudocapacitor* (menghasilkan kerapatan energi yang tinggi) pada sel kapasitor yang sama. *Hybrid capacitor* menjanjikan kerapatan energi yang lebih besar dari EDLCs dan *cycling stability* yang lebih baik dari *pseudocapacitor*. Perbandingan antara karakteristik baterai dan superkapasitor disajikan pada tabel 2.3 berikut ini.

Tabel 2.3 Perbandingan karakteristik baterai dan superkapasitor (Lu, 2013)

	Baterai	<i>Electrostatic capacitor</i>	<i>Supercapacitor</i>
Waktu <i>discharge</i>	0,3-3 h	$10^{-3} - 10^{-6}$ s	0,3-30 s
Waktu <i>charge</i>	1-5 h	$10^{-3} - 10^{-6}$ s	0,3-30 s
Densitas energi (Wh/kg)	10-100	<0.1	01-Okt
Densitas daya (Wh/kg)	50-200	>10.000	~1000
<i>Charge-discharge efficiency</i>	0.7-0.85	~1	0.85-0.98
Masa pakai	500-2000	>500.000	>100.000

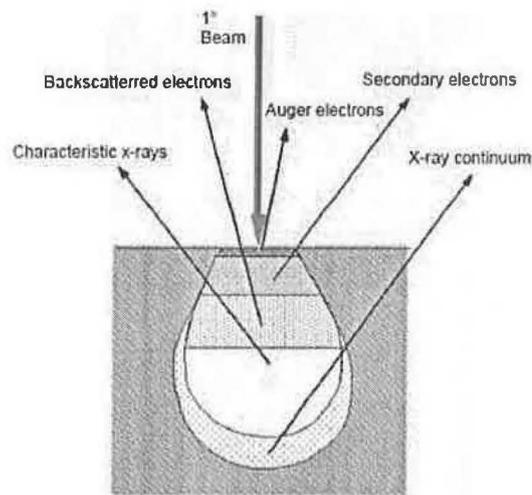
2.7 Metode Analisis

Hasil yang telah diperoleh dari proses sintesis material karbon nano harus di analisis dengan menggunakan beberapa metode analisis. Tujuan dari proses analisis ini

adalah untuk mengidentifikasi hasil yang didapatkan baik morfologi bentuknya, komposisi dan sifat kimianya, serta potensinya sebagai elektroda dalam superkapasitor. Pada umumnya, analisis fisika dan kimia dibagi menjadi analisis mikroskopik dan analisis spektroskopi (Mukhopadhyay, 2003). Analisis mikroskopik bertujuan untuk mengidentifikasi bentuk, morfologi, dan struktur dari hasil yang diperoleh. Analisis mikroskopik meliputi beberapa metode analisis antara lain: *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan *Transmission Electron Microscopy* (TEM) (Mukhopadhyay, 2003). Sedangkan analisis spektroskopi bertujuan untuk mengidentifikasi komposisi kimia dan sifat kimia dari hasil yang diperoleh (Mukhopadhyay, 2003). Analisis spektroskopi meliputi beberapa metode analisa, antara lain: *Raman Spektroskopi* dan *X-ray Diffraction* (XRD) (Mukhopadhyay, 2003). Pada bagian ini akan dibahas lebih lanjut mengenai SEM, TEM, Raman, XRD, serta analisa elektrokimia.

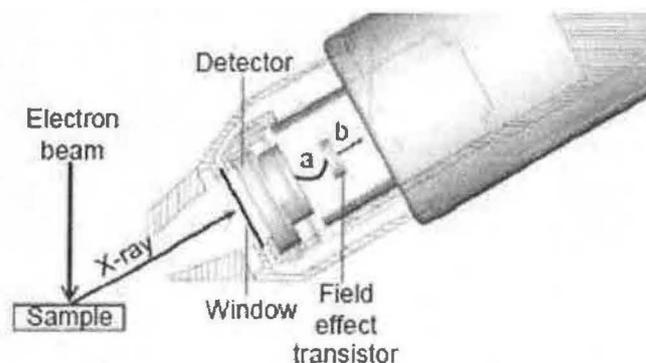
2.7.1 *Scanning Electron Microscopy* (SEM)

Scanning Electron Microscopy (SEM) merupakan salah satu metode analisis untuk mengetahui mikrostruktur seperti topografi dan komposisi dari suatu benda padat (Swaminathan & Iutzi, 2008). Prinsip dari metode ini adalah mengalirkan atau melewati sinar elektron berenergi tinggi ke permukaan suatu padatan. Setelah itu akan terjadi interaksi antara elektron dan atom pada permukaan padatan. Dengan adanya interaksi antara elektron dan atom pada permukaan padatan, terdapat sejumlah elektron yang ditransmisi, terdifraksi, dan dipantulkan oleh permukaan padatan. Pada saat elektron berinteraksi dengan atom pada permukaan padatan, elektron diubah menjadi suatu sinyal. Sinyal tersebut kemudian dipantulkan dan menghasilkan informasi berupa struktur dan morfologi dari permukaan padatan tersebut (Swaminathan & Iutzi, 2008). Pada metode SEM, terdapat beberapa jenis sinyal antara lain elektron sekunder (SE), *backscattered electron* (BSE), dan X-ray (Swaminathan & Iutzi, 2008). Elektron sekunder (SE) berfungsi untuk memberikan informasi berupa morfologi dan topografi dari sampel. *Backscattered electron* (BSE) berfungsi untuk memberikan informasi komposisi sampel. X-rays berfungsi untuk memberikan informasi berupa identitas dari sampel (Swaminathan & Iutzi, 2008). Ilustrasi dari sinyal yang dihasilkan oleh tembakan elektron pada spesimen disajikan pada gambar 2.20 berikut ini.

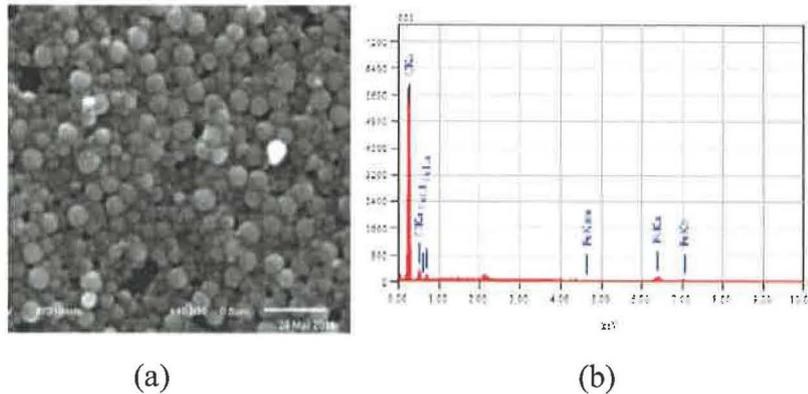


Gambar 2.20 Ilustrasi sinyal yang dihasilkan oleh tembakan elektron pada spesimen (Zhou & Wang, 2006)

Umumnya instrumen analisis SEM dilengkapi dengan *Energy Dispersive Spectroscopy* (EDS) (Anonim, 2015). EDS melakukan pembacaan hasil analisis berdasarkan sinar X yang dipancarkan oleh sampel. Pada saat elektron berinteraksi dengan atom pada permukaan sampel, maka elektron akan bergerak dari kulit atom berenergi tinggi ke kulit atom berenergi rendah (dari kulit terluar ke dalam) (Anonim, 2015). Pada kondisi tersebut, kulit atom bagian terluar akan melepaskan energi dalam bentuk sinar X. Sinar X ini kemudian akan ditangkap oleh EDS dan diolah menjadi sebuah informasi dalam bentuk grafik dengan puncak-puncak tertentu yang menunjukkan unsur-unsur yang terkandung di dalam sampel (Anonim, 2015). Analisis dengan menggunakan *energy dispersive x-ray spectroscopy* disajikan pada gambar 2.21 dan gambar hasil analisis SEM dan SEM-EDS disajikan pada gambar 2.22.



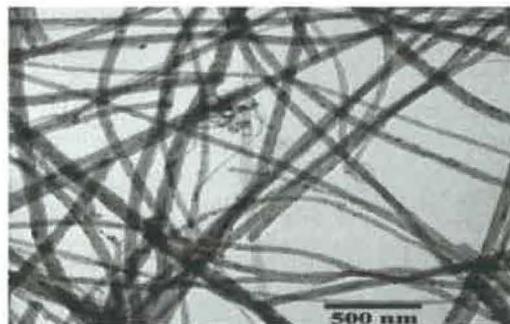
Gambar 2.21 Analisis dengan menggunakan *energy dispersive x-ray spectroscopy* (Zhou & Wang, 2006)



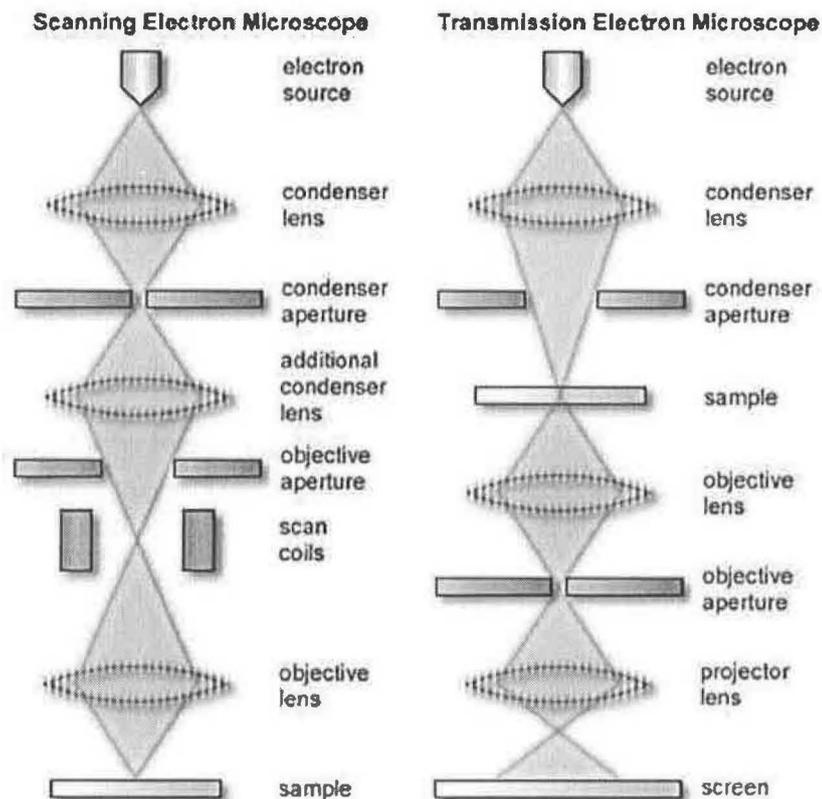
Gambar 2.22 (a) Hasil analisis foto SEM. (b) Hasil dari analisis SEM-EDS (Kristianto et al., 2015)

2.7.2 *Transmission Electron Microscopy (TEM)*

Transmission Electron Microscopy (TEM) merupakan metode analisis yang mirip dengan SEM yaitu menggunakan elektron sebagai sumber utama (Swaminathan & Iutzi, 2008). Pada metode ini, elektron dilewatkan pada permukaan sampel sehingga akan terjadi interaksi antara elektron dengan atom pada permukaan padatan atau sampel (Swaminathan & Iutzi, 2008). Setelah terjadi interaksi, elektron akan tertransmisi, terdifraksi dan terpantulkan oleh permukaan sampel. Namun, jika pada metode SEM, informasi didapat dari sinyal yang dipantulkan oleh permukaan sampel, maka pada TEM, informasi didapat dari elektron yang tertransmisikan atau terdifraksikan pada permukaan sampel (Swaminathan & Iutzi, 2008). Informasi yang didapat berupa struktur internal dari sampel yang dianalisis (Swaminathan & Iutzi, 2008). Perbedaan lainnya antara SEM dan TEM adalah SEM dapat menganalisis sampel yang memiliki berbagai ketebalan, sedangkan TEM hanya mampu menganalisis sampel yang tipis dan halus. Selain itu SEM umumnya menampilkan informasi dalam gambar 3D sedangkan TEM menampilkan informasi dalam bentuk gambar 2D (Swaminathan & Iutzi, 2008). Contoh foto analisis TEM disajikan pada gambar 2.23 dan perbedaan antara analisa SEM dan TEM disajikan pada gambar 2.24.



Gambar 2.23 Hasil analisis TEM (SÁRKÖZI et al., 2008)



Gambar 2.24 Perbedaan SEM dan TEM

2.7.3 Raman Spektroskopi

Raman spektroskopi merupakan salah satu metode analisis spektroskopi yang bertujuan untuk mengetahui kualitas dari produk yang dihasilkan dengan cara mengidentifikasi ikatan- ikatan pada produk (Hodkiewicz, 2010) (Parshotam, 2007). Analisis raman dilakukan dengan menyinari sampel dengan sinar monokromatik (Parshotam, 2007). Setelah itu, sinar tersebut akan terserap oleh sampel dan terpancarkan kembali. Sinar yang terpancarkan kembali tersebut bisa memiliki frekuensi yang sama dengan frekuensi awalnya ataupun mengalami pergeseran frekuensi dari frekuensi awalnya (Parshotam, 2007). Pergeseran frekuensi tersebut dapat disebabkan karena adanya interaksi antara sinyal dengan tingkat energi vibrasi molekul. Sinar yang memiliki frekuensi yang sama disebut sebagai hamburan Rayleigh (Parshotam, 2007). Hamburan Rayleigh tidak dapat digunakan untuk mengidentifikasi sampel. Hasil dari analisis raman ini berupa besarnya intensitas sinar yang dipancarkan kembali oleh sampel yang telah mengalami pergeseran frekuensi (Parshotam, 2007).

Pada analisis raman, terdapat 2 buah puncak karbon yaitu puncak D dan puncak G. Puncak D merupakan puncak yang menunjukkan adanya struktur karbon acak seperti karbon amorf atau karbon nonkristalin (Parshotam, 2007). Puncak D umumnya berada pada 1200- 1400 cm^{-1} (Hodkiewicz, 2010). Puncak G merupakan puncak yang menunjukkan konfigurasi sp^2 dimana konfigurasi ini juga ditemukan pada struktur *graphene* (Parshotam, 2007). Puncak G umumnya berada pada 1582 cm^{-1} (Hodkiewicz, 2010). Karakteristik dari material karbon nano yang dihasilkan dapat dianalisis dengan menggunakan perbandingan antara puncak D dan puncak G. Apabila I_G/I_D semakin besar maka kristalinitas dari material karbon nano yang dihasilkan semakin tinggi (Parshotam, 2007).

2.7.4 X-ray Diffraction (XRD)

Metode XRD merupakan salah satu metode analisis spektroskopi yang bertujuan untuk mengetahui gugus dan jenis kristalin yang terkandung di dalam material karbon nano yang dihasilkan (Birkholz, 2006). Prinsip dari analisis XRD adalah memancarkan sinar X ke permukaan sampel (Birkholz, 2006). Setelah itu sinar tersebut akan diserap dan terdifraksikan oleh atom-atom pada permukaan sampel. Sinar X yang terdifraksikan tersebut kemudian akan tertangkap oleh detektor dan digunakan sebagai informasi yang merupakan hasil analisis (Birkholz, 2006). Analisis XRD dilakukan dengan mengikuti persamaan Bragg (Birkholz, 2006) sesuai dengan persamaan 2.3.

$$2.d.\sin\theta = \lambda \quad (2.3)$$

Keterangan : λ = panjang gelombang sinar X

θ = sudut difraksi

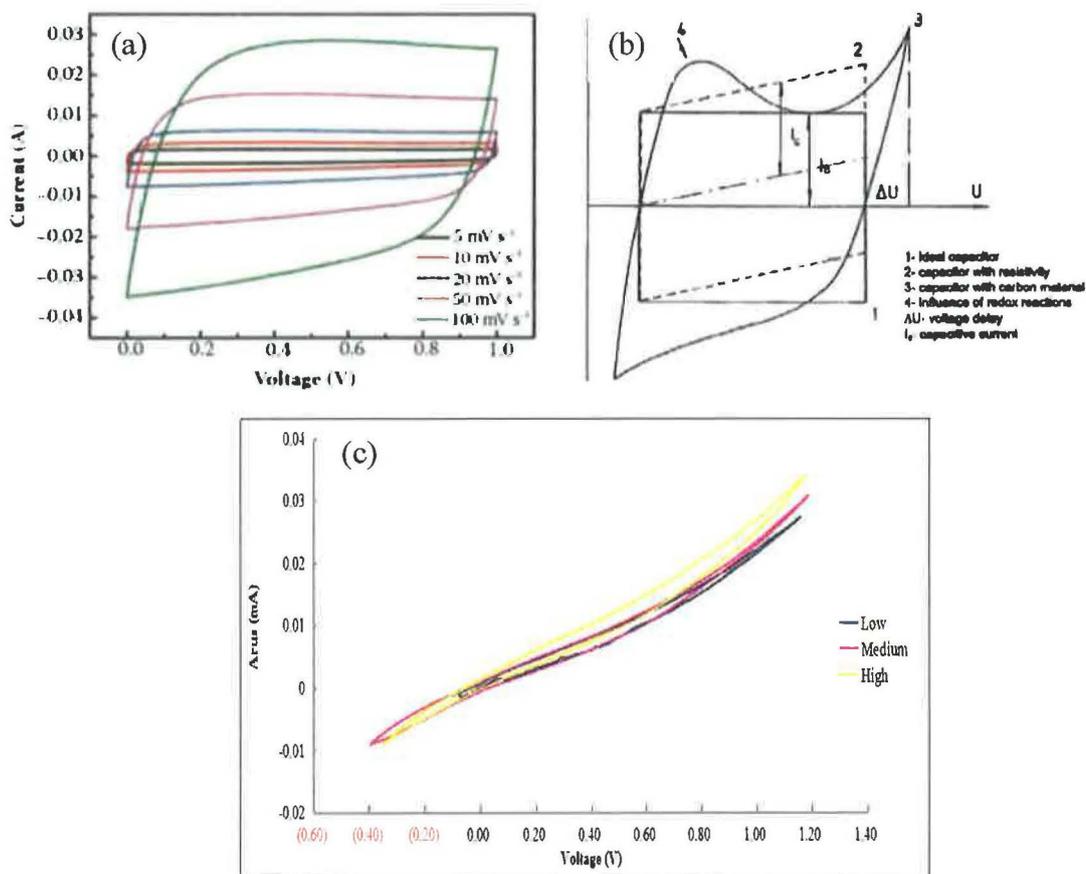
d = jarak antar kisi

Pada metode analisis XRD, hasil akan ditampilkan dalam bentuk grafik yang menghubungkan intensitas sinar X terhadap sudut 2θ (Elena & Lucia, 2012). Intensitas sinar X menunjukkan jumlah dari sinar X yang terdifraksikan oleh sampel (Elena & Lucia, 2012). Digunakan sudut 2θ karena sudut putar dari detektor sebesar 2θ (Elena & Lucia, 2012) dimana θ merupakan sudut difraksi cahaya. Pada grafik hasil analisis, akan muncul puncak difraksi dimana puncak tersebut menunjukkan gugus dan kandungan kristalin yang terdapat dalam sampel (Birkholz, 2006). Identifikasi gugus dan kandungan kristalin tersebut menggunakan indeks miller atau indeks bidang. Indeks miller terdiri dari bilangan-

bilangan yang merupakan kebalikan dari perpotongan suatu bidang dengan sumbu-sumbu konvensionalanya (x, y, z) (Birkholz, 2006). Dalam proses analisis sampel, apabila terbentuk puncak (002) pada $2\theta = 26,6^\circ$ (Liu et al., 2014) maka dapat dikatakan sampel tersebut memiliki karbon dengan konfigurasi sp^2 yang biasa ditemukan pada *graphene*.

2.7.5 Analisis Elektrokimia

Salah satu metode analisa yang dapat digunakan untuk mengetahui performa dari superkapasitor adalah analisa *cyclic voltammetric* (CV). Analisa CV merupakan analisa superkapasitor melalui kinetika elektrokimia, *reaction reversibility*, dan mekanisme reaksi. CV menghasilkan informasi dasar tentang sel elektrokimia termasuk *voltage window*, kapasitansi, dan siklus hidup, kinetika elektrokimia, mekanisme reaksi, dan reversibilitas reaksi. Untuk EDLC ideal, kurva CV akan membentuk sebuah persegi panjang, selama kapasitansi tidak berubah pada variasi tegangan (Shen et al., 2016) (gambar disajikan pada Gambar 2.25).



Gambar 2.25 (a) Kurva CV untuk EDLC (Shen et al., 2016); (b) Kurva CV pada keadaan ideal dengan berbagai kondisi kapasitor (Frackowiak et al., 2001); (c) Kurva CV untuk CNT komersial (Hadisaputra, 2015)

Laju kapabilitas dari superkapasitor dapat tercermin dari CV dengan memanipulasi *scan rate*, makin besar *scan rate* berarti waktu pengisian arus atau pelepasan arus terjadi dengan singkat. *Scan rate* (mV/s) adalah perubahan potensial terhadap waktu (Yandra, 2015). Dari gambar 2.25 a, pada tingkat *scan rate* yang rendah, kurva CV mendekati keadaan idealnya yaitu persegi panjang, sedangkan jika diamati pada *scan rate* yang tinggi, kurva CV terdistorsi, hal ini dikarenakan kapasitansi spesifik superkapasitor berkurang yang dapat diakibatkan oleh transportasi ion yang lamban dari elektrolit menuju permukaan elektroda pada tegangan sel yang cepat atau berubah sehingga terjadi peningkatan pori yang tidak dapat diakses di bagian elektroda (Shen et al., 2016).

2.8 Studi yang Telah Dilakukan

Sintesis material karbon nano dengan metode *nebulized spray pyrolysis* sudah pernah dilakukan sebelumnya. Pada penelitian yang dilakukan oleh Afre, et al (2006) dengan menggunakan sumber karbon *turpentine oil*, gas inert berupa gas nitrogen, dan katalis bimetal Co dan Fe yang di impregnasikan pada *silica gel* berhasil mensintesis *carbon nanotube*. Hal ini dapat diketahui dari hasil analisa menggunakan raman spektroskopi dimana terbentuk 2 buah puncak yaitu puncak D dan puncak G yang menunjukkan karbon memiliki konfigurasi sp^2 sebagaimana konfigurasi tersebut terdapat pada *graphene*. Pada penelitian ini, temperatur divariasikan pada 500°C, 600°C, 700°C, 800°C, dan 900°C. Dari hasil SEM (tidak ditampilkan disini), dapat diketahui bahwa pada kelima variasi temperatur tersebut, dapat tersintesis material karbon nano yang berbentuk tube (CNT). Dari hasil penelitian, pada temperatur 700° didapatkan CNT dengan diameter paling seragam dan perolehan CNT yang paling besar (Rakesh A. Afre, 2006).

Pada penelitian yang dilakukan oleh Abdullah, et al (2004) yaitu sintesis CNT dengan menggunakan etanol sebagai karbon prekursor, gas argon sebagai gas inert, dan *ferrocene* sebagai katalis. Pada penelitian ini, laju alir gas inert diatur 2 L/min sedangkan temperatur operasi dan perbandingan Fe:C di variasikan. Temperatur yang digunakan adalah 800°C, 850°C, dan 900°C. Perbandingan Fe:C yang digunakan adalah 0,75 wt% dan 1,5 wt%. Dari hasil analisis menggunakan SEM (tidak ditampilkan disini), pada percobaan dengan temperatur operasi 850°C, laju alir gas inert 2 L/min, dan Fe:C bervariasi, didapatkan diameter CNT akan meningkat seiring meningkatnya perbandingan Fe:C. Sedangkan dari hasil analisis dengan menggunakan SEM (tidak ditampilkan disini), pada percobaan dengan Fe:C sebesar 1,5wt%, laju alir gas inert 2 L/min, dan temperatur

bervariasi, didapatkan diameter CNT akan meningkat seiring meningkatnya temperatur operasi. Kondisi optimal yang didapat dari penelitian ini adalah pada temperatur operasi 800- 850 °C, Fe:C 1,5wt% ,dan laju alir gas argon 2 L/min (Abdullah et al., 2004).

Pada penelitian yang dilakukan oleh Konstantia, et al (2016) menggunakan *turpentine oil* sebagai karbon prekursor, gas nitrogen sebagai gas inert, karbon aktif sebagai substrat, dan *ferrocene* sebagai katalis. Namun pada penelitian ini, katalis tidak di impregnasikan pada substrat tetapi dilakukan pengontakan secara *floating catalyst*. Pada penelitian ini, temperatur operasi diatur sebesar 700°C dan konsentrasi katalis di variasikan yaitu 0,015g/ml ; 0,020 g/ml ; dan 0,025 g/ml. Dari hasil analisis menggunakan SEM dan TEM (tidak ditampilkan disini) dapat diketahui bahwa pada konsentrasi katalis sebesar 0,015g/ml dan 0,020 g/ml dapat disintesis CNS namun pada konsentrasi 0,025g/ml dapat disintesis CNT. Dari hasil anali sis menggunakan raman spektroskopi juga dapat diketahui bahwa hasil yang didapat merupakan material karbon nano karena terbentuk 2 puncak yaitu puncak G ($\sim 1580 \text{ cm}^{-1}$) dan puncak D ($\sim 1350 \text{ cm}^{-1}$). Dari hasil analisis menggunakan XRD, hanya terdapat 2 buah puncak yaitu (002) pada $2\theta = 23^\circ$ dan (100) pada $2\theta = 44^\circ$. Kedua puncak tersebut lazim ditemukan pada CNS. Hal ini menunjukkan karbon yang terbentuk memiliki konfigurasi sp^2 dan tidak terbentuk logam kontaminan pada material karbon nano yang dihasilkan. Pada penelitian ini dapat disimpulkan bahwa konsentrasi katalis yang digunakan dapat menentukan jenis karbon nanoyang terbentuk (Arie & Konstantia, 2016).

Selain ketiga penelitian tersebut, dilakukan juga penelitian oleh Wijaya (2015) yang berhasil mensintesis CNT dari *kerosene* dengan menggunakan katalis *ferrocene*. Pada penelitian ini, material karbon nano dideposisikan pada substrat karbon aktif. Variasi yang digunakan berupa variasi temperatur yaitu 650°C; 700°C; dan 750°C, variasi konsentrasi katalis yaitu 1,5 g/100ml *kerosene*; 2 g/100ml *kerosene*; dan 2,5 g/100ml *kerosene*, dan variasi waktu operasi yaitu 15 menit; 30 menit; dan 45 menit. Dari hasil analisis yang dilakukan dapat diketahui bahwa material karbon nano dapat disintesis dengan baik pada temperatur 700 °C, konsentrasi katalis 2,5 g/100ml *kerosene*, dan waktu operasi 30 menit. Dari hasil analisis SEM (tidak ditampilkan disini) diketahui bahwa semakin tinggi temperatur operasi maka material karbon nano yang terbentuk akan semakin seragam dan memiliki diameter yang kecil namun apabila terlalu tinggi maka akan terjadi pemecahan ikatan karbon pada karbon nano yang mengakibatkan pembentukan kembali *graphene*. Dari hasil analisis SEM dan TEM (tidak ditampilkan disini) bahwa semakin besar

konsentrasi katalis yang digunakan jumlah material karbon nano yang dihasilkan semakin banyak. Selain itu, dari hasil analisis SEM dan TEM dapat diketahui semakin tinggi waktu operasi maka akan semakin banyak material karbon nano yang dihasilkan namun apabila waktu operasi terlalu lama dapat memicu terjadinya pemecahan ikatan karbon nano menjadi *graphene* (Wijaya, 2015).

Dari setiap premis yang disajikan diatas, perbedaan yang signifikan dengan kondisi operasi penelitian yang dilakukan ini adalah penggunaan substrat sebagai media tumbuh karbon nano. Pada penelitian ini tidak digunakan substrat sebagai media pertumbuhan, akan tetapi karbon nano yang dihasilkan tumbuh di dinding reaktor *stainless steel*. Hal ini dikarenakan pada kebanyakan industri karbon nano tidak memakai substrat sebagai media pertumbuhan melainkan karbon nano tumbuh di dinding reaktor.



BAB III BAHAN DAN METODE

3.1 Gambaran Umum Penelitian

Pada penelitian ini, dilakukan sintesis material karbon nano menggunakan metode *nebulized spray pyrolysis* dari minyak kelapa sawit. Katalis yang digunakan pada penelitian ini adalah *ferrocene* dengan konsentrasi 0,015 g/ml; 0,020 g/ml; dan 0,025 g/ml. Katalis dikontakan dengan karbon prekursor dengan metode *floating catalyst*. Gas pembawa yang digunakan adalah gas nitrogen dengan laju alir 1,21 sccm. Pada percobaan ini, temperatur operasi yang digunakan adalah 650°C; 700°C; 750°C; 800°C; 850 °C; dan 900°C, serta waktu operasi yang digunakan adalah 30 menit. Penelitian yang dilakukan kali ini tidak menggunakan susbtrat sebagai media pertumbuhan, namun material karbon nano langsung ditumbuhkan pada dinding tabung. Hasil yang diperoleh dari penelitian ini ditimbang untuk diketahui berat sampel yang didapat serta dianalisis karakteristiknya menggunakan metode analisis SEM, EDS, XRD, dan CV.

3.2 Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan dalam penecilitan ini dibagi menjadi 2 bagian, yaitu peralatan utama proses *nebulized spray pyrolysis* dan peralatan lainnya sebagai penunjang yang dibahas pada sub-bab 3.2.2. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini dibahas pada sub-bab 3.2.1.

3.2.1 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian sintesis material karbon nano ini adalah sebagai berikut:

1. Minyak goreng
2. *Ferrocene*
3. Heksana
4. Gas Nitrogen
5. Nikel Oksida
6. Etanol
7. KOH

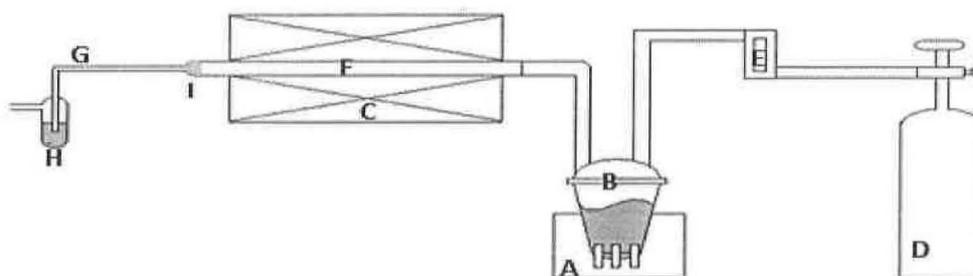
3.2.2 Alat

Peralatan yang digunakan pada penelitian sintesis material karbon nano ini adalah sebagai berikut:

- | | |
|-------------------------------------|---------------------|
| 1. Nebulator | 9. Spatula |
| 2. <i>Furnace</i> tabung horisontal | 10. Cawan penguapan |
| 3. <i>Flowmeter</i> | 11. Cawan krus |
| 4. Gelas kimia 500 ml | 12. Ayakan 100 mesh |
| 5. Pipet tetes | 13. Penjepit krus |
| 6. Corong | 14. Stopwatch |
| 7. Gelas ukur 100 ml | 15. Neraca digital |
| 8. Batang pengaduk | 16. Desikator |

3.3 Rangkaian Alat Percobaan

Rangkaian alat percobaan yang digunakan untuk mensintesis material karbon nano disajikan pada gambar 3.1.



Gambar 3.1 Rangkaian alat yang digunakan saat percobaan

Keterangan gambar 3.1:

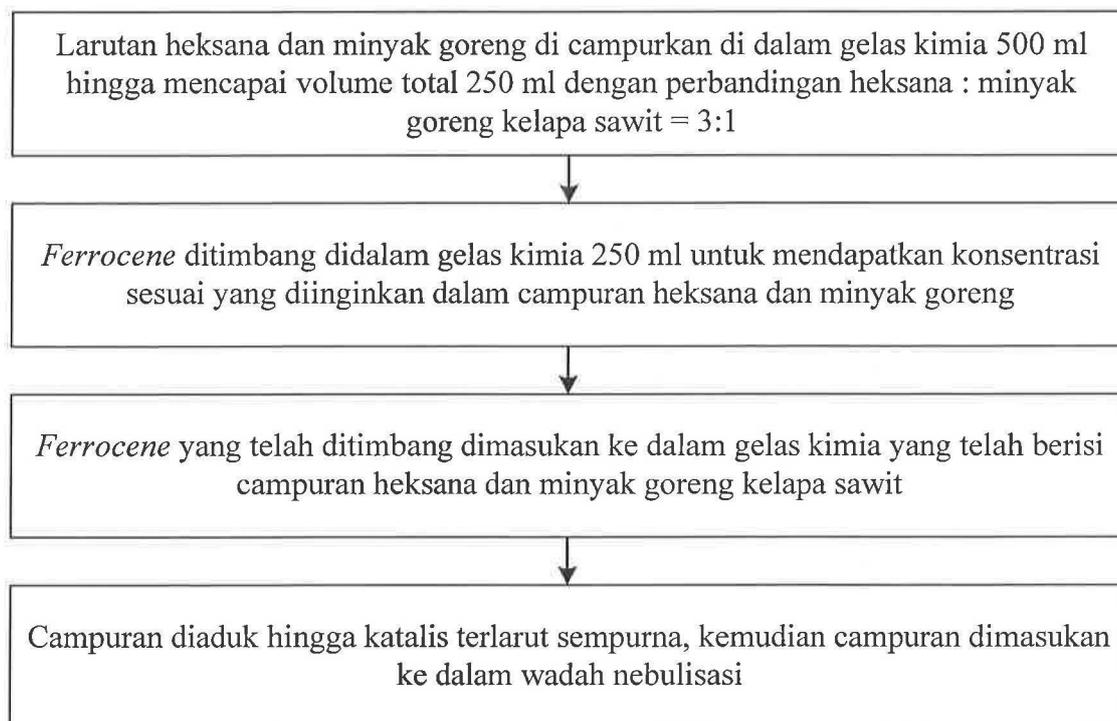
- | | |
|------------------------------|-------------------------|
| A. Nebulator | G. Selang karet |
| B. Wadah nebulisasi | H. <i>Water bubbler</i> |
| C. <i>Furnace</i> | I. <i>Glasswool</i> |
| D. Tabung gas N ₂ | |
| E. <i>Flowmeter</i> | |
| F. Tabung besi / reaktor | |

3.4 Prosedur Percobaan

Prosedur percobaan ini diadaptasi dari penelitian terdahulu yang dilakukan di UNPAR. Percobaan ini terdiri dari proses pembuatan larutan prekursor, proses sintesis material karbon nano, dan proses pembuatan elektroda.

3.4.1 Pembuatan Larutan Prekursor

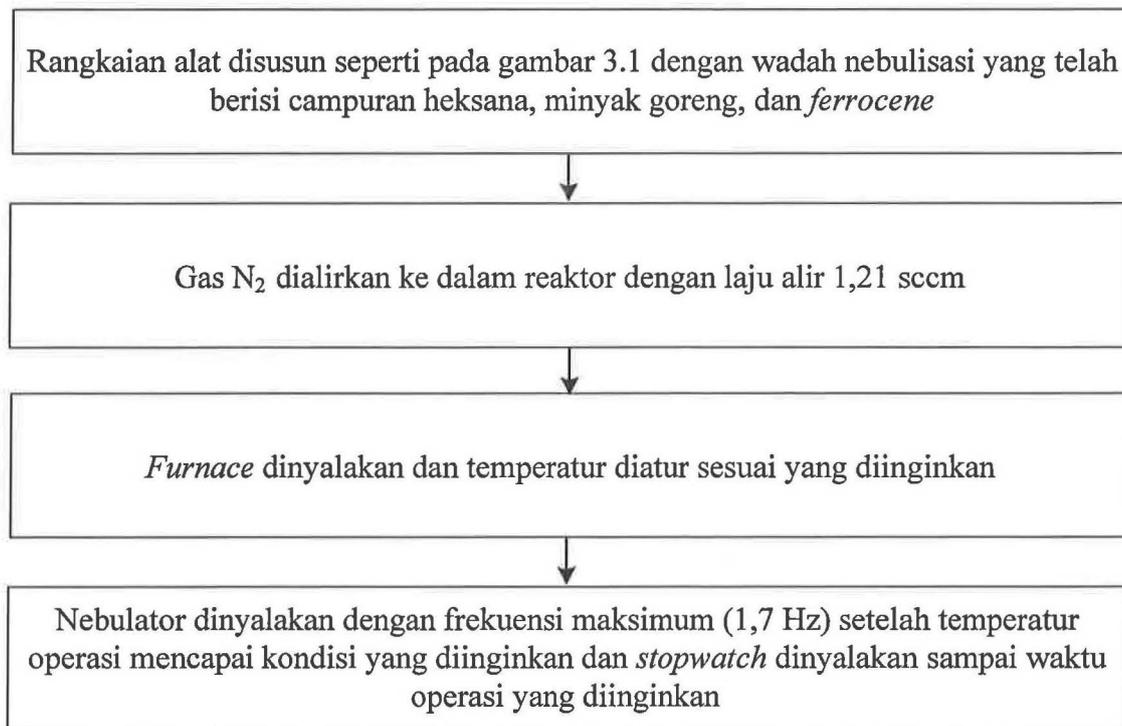
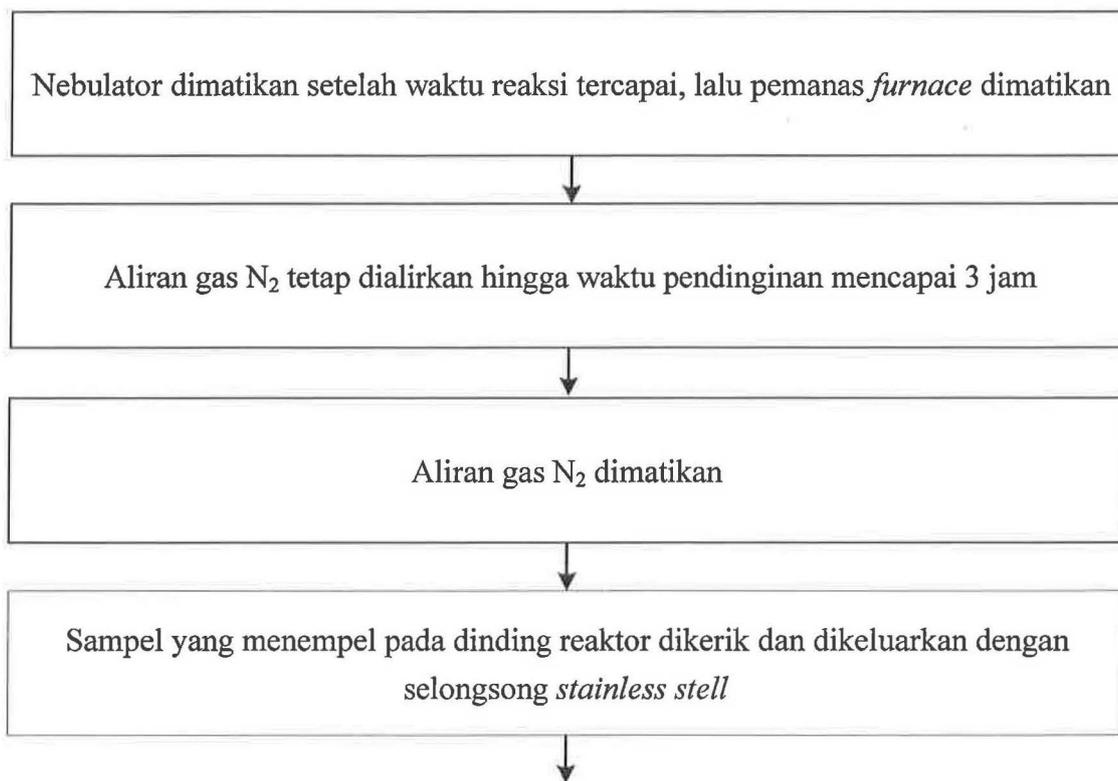
Pada proses pembuatan larutan prekursor, tegangan permukaan minyak goreng perlu diturunkan dengan menggunakan larutan heksana. Pada proses ini juga, katalis dikontakkan dengan larutan prekursor dengan metode *floating catalyst*. Proses pembuatan larutan prekursor disajikan dalam gambar 3.2.

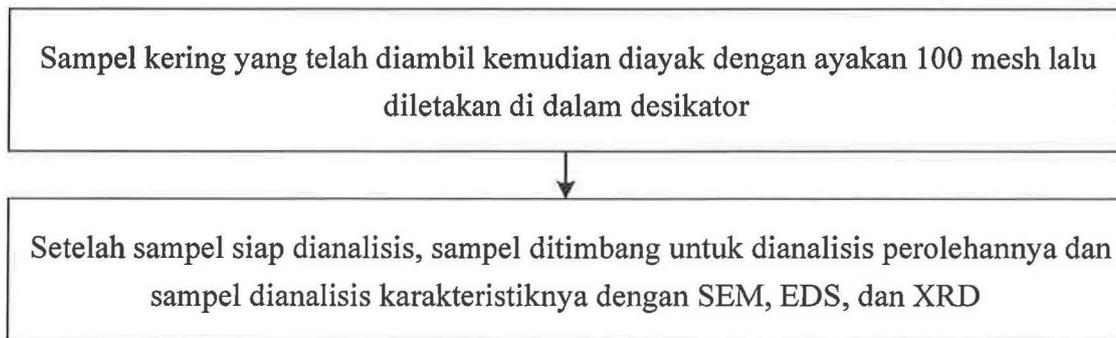


Gambar 3.2 Proses sintesis larutan prekursor

3.4.2 Proses Sintesis Material Karbon Nano

Proses sintesis material karbon nano di bagi menjadi 2 tahap yaitu tahap persiapan dan *start up* (disajikan pada gambar 3.3) serta tahap pemisahan dan *shut down* (disajikan pada gambar 3.4). Kedua tahap tersebut adalah sebagai berikut:

Persiapan dan *start up***Gambar 3.3** Proses persiapan dan *start up***Pemisahan dan *shut down*****Gambar 3.4** Proses pemisahan dan *shut down*



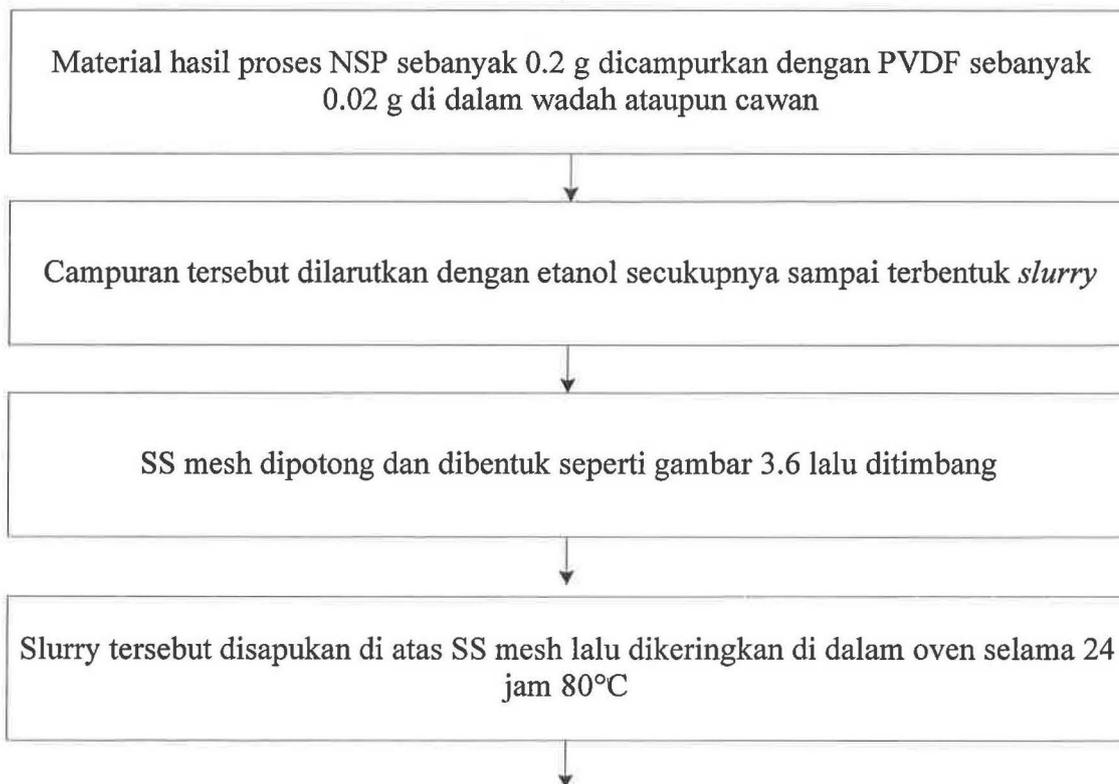
Gambar 3.4 Proses pemisahan dan *shut down* (lanjutan)

3.4.3 Proses Pembuatan Sel Elektroda

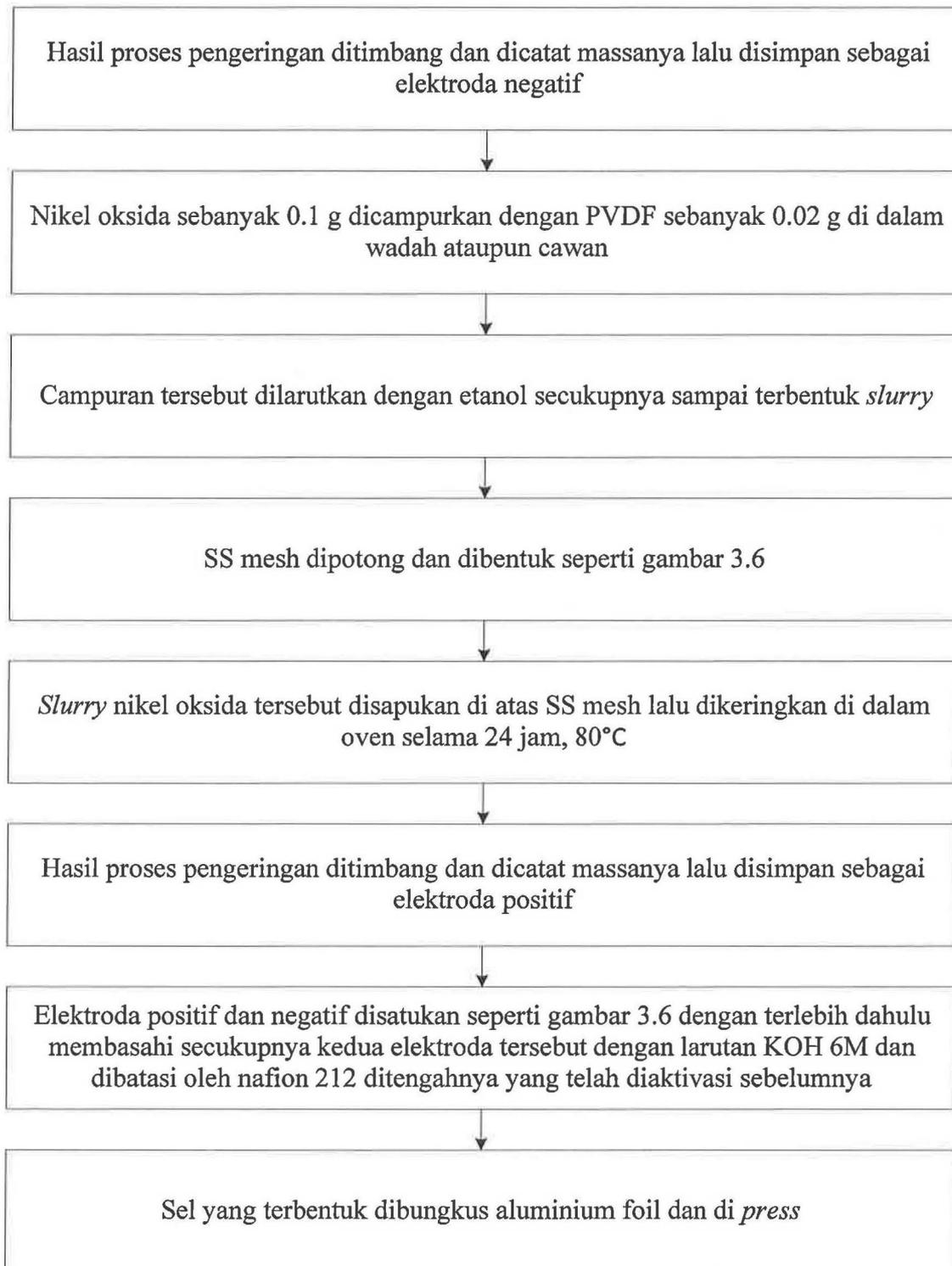
Sebelum analisa CV dilakukan, material karbon nano yang telah tersintesis harus dipreparasi terlebih dahulu. Prosedur pembuatan sel elektroda disajikan pada gambar 3.5. Pengukuran CV dilakukan dengan scan rate 2 mV/s ; 5mV/s; dan 10mV/s dengan masing-masing 1 siklus. Pengukuran kapasitansi dari hasil analisa CV dilakukan dengan menggunakan persamaan (Elmouwahidi, Zapata-Benabith et al., 2012):

$$C = \frac{\sum |I| \cdot \Delta t}{z \cdot m \cdot \Delta V} \quad (3.1)$$

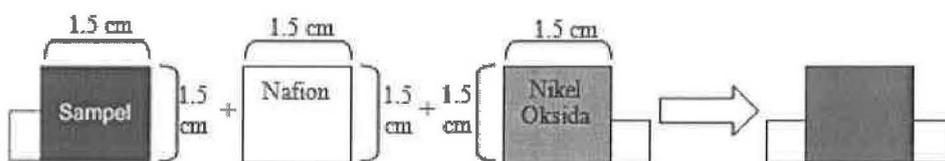
dengan $\sum |I| \cdot \Delta t$ merupakan luas area kurva I terhadap t, ΔV selisih voltase yang digunakan, dan m adalah massa sampel karbon aktif yang diuji.



Gambar 3.5 Proses pembuatan sel elektroda



Gambar 3.5 Proses pembuatan sel elektroda (lanjutan)



Gambar 3. 6 Susunan sel uji superkapasitor

3.5 Tabel Variasi Percobaan

Variasi yang dilakukan pada percobaan ini adalah variasi konsentrasi katalis, laju alir gas nitrogen, temperatur operasi, dan waktu operasi. Variasi- variasi tersebut disajikan pada tabel 3.1.

Tabel 3. 1 Variasi percobaan

Temperatur operasi (°C)	Konsentrasi katalis (g/ml)	Waktu Operasi (menit)	Laju alir gas inert (sccm)
650	0,025	30	1,21
700	0,025	30	1,21
750	0,025	30	1,21
800	0,025	30	1,21
850	0,025	30	1,21
900	0,025	30	1,21
T optimum	0,015	30	1,21
T optimum	0,020	30	1,21

3.6 Metode analisis

Material karbon nano yang dihasilkan pada percobaan ini dianalisis dengan beberapa metode analisis, antara lain:

1. Uji SEM untuk mengetahui bentuk morfologi dari sampel.
2. Uji EDS untuk mengetahui unsur- unsur yang terdapat dalam sampel.
3. Uji XRD untuk kristalinitas dari sampel.
4. Uji CV untuk mengetahui kapasitansi sel.
5. Penimbangan untuk mengetahui jumlah sampel yang didapat.

3.7 Lokasi dan Jadwal Kerja Penelitian

Percobaan sintesis material karbon nano dilaksanakan di Laboratorium Rekayasa Reaksi Kimia, Jurusan Teknik Kimia Universitas Katolik Parahyangan. Proses analisis SEM- EDS dilaksanakan di Laboratorium SEM, FMIPA, Institut Teknologi Bandung; analisis XRD dilaksanakan di Laboratorium Instrument, Labtek X, Jurusan Teknik Kimia, ITB; dan analisa CV dilaksanakan di Labtek X, Jurusan Teknik Kimia, ITB. Jadwal kerja penelitian disajikan pada tabel 3.2.

Tabel 3. 2 Jadwal kerja penelitian

Kegiatan	Agustus				September				Oktober				November				Desember			
	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
Persiapan Alat dan Bahan																				
Penelitian																				
Analisis sampel																				
Penyusunan Laporan																				

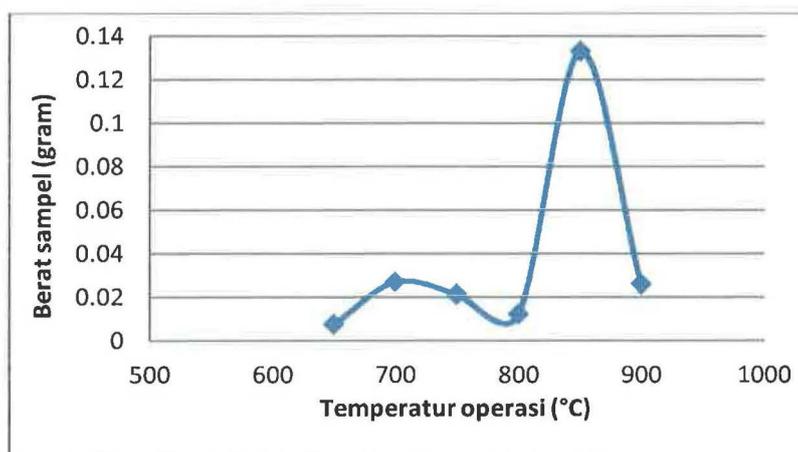


BAB IV PEMBAHASAN

Sintesis karbon nano yang dilakukan pada penelitian ini menggunakan metode *nebulized spray pyrolysis* (NPS) dengan deposisi secara langsung pada dinding tabung. Sumber karbon yang digunakan berasal dari minyak goreng kelapa sawit baru dengan merk dagang Kunci Mas. Adapun variasi percobaan yang dilakukan yaitu variasi temperatur dan konsentrasi katalis. Konsentrasi katalis *ferrocene* yang digunakan pada penelitian ini yaitu 0,015 g/ml; 0,020 g/ml; dan 0,025 g/ml. Katalis *ferrocene* dicampurkan dengan larutan minyak goreng dan heksana menggunakan metode *floating catalyst* yang kemudian dinebulisasi selama 30 menit pada temperatur 650°C; 700°C; 750°C; 800°C; 850°C; dan 900°C. Hasil dari seluruh variasi tersebut kemudian ditimbang untuk diketahui berat sampel yang didapat kemudian dianalisa karakteristiknya menggunakan beberapa metode analisis, antara lain: analisis mikroskopik berupa SEM untuk mengetahui bentuk morfologi dari sampel dan EDS untuk mengetahui unsur-unsur yang terkandung di dalam sampel, analisis *spectroscopy* berupa XRD untuk mengetahui kristalinitas dari sampel, serta analisa elektrokimia berupa CV untuk mengetahui kapasitansi dari sel dalam mengetahui potensi penggunaannya dalam superkapasitor.

4.1 Variasi Temperatur

Langkah awal dari penelitian ini yaitu mencari temperatur operasi optimum dengan menetapkan variabel konsentrasi katalis sebesar 0,025 gr/ml. Percobaan dilakukan dengan menggunakan waktu operasi (nebulisasi) selama 30 menit dengan laju alir gas inert 1,21 sccm. Hasil percobaan kemudian ditimbang untuk diketahui berat sampel yang diperoleh (dapat dilihat pada gambar 4.1).



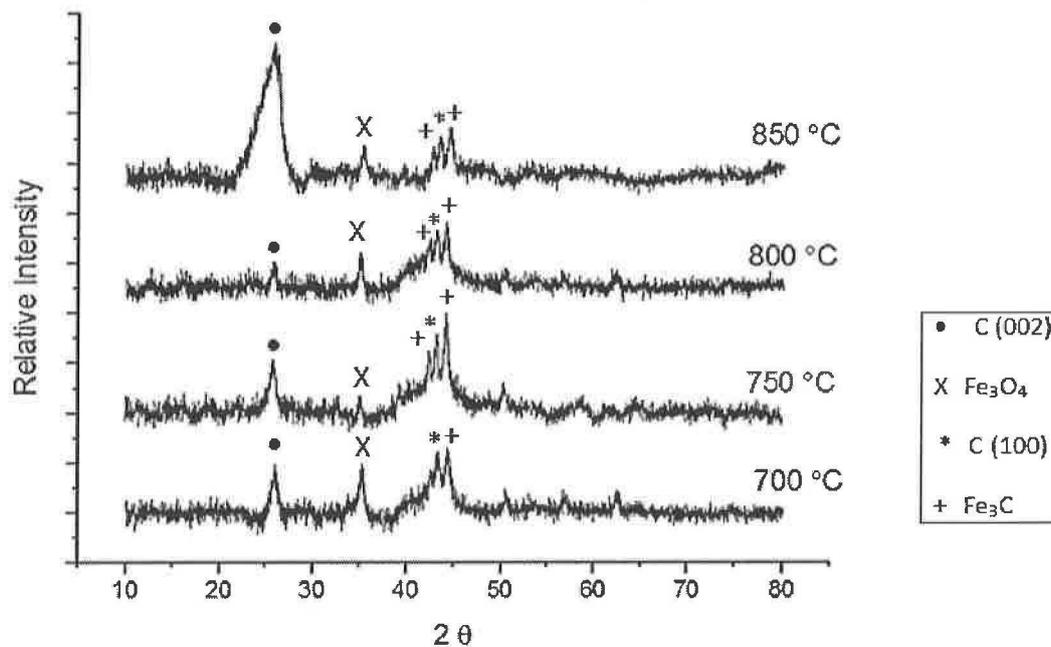
Gambar 4. 1 Berat sampel percobaan variasi temperatur

Berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Parshotam (2007), semakin tinggi temperatur operasi maka berat sampel yang didapat akan semakin tinggi karena proses dekomposisi campuran karbon prekursor dan katalis *ferrocene* akan berlangsung lebih mudah dan cepat (Parshotam, 2007). Namun pada penelitian tersebut tidak disebutkan batas optimum dari temperatur operasi sehingga tidak dapat diketahui apakah akan terjadi penurunan jumlah massa sampel setelah melewati temperatur operasi. Apabila dibandingkan dengan hasil penelitian yang didapat, terjadi penyimpangan dimana berat sampel mengalami kenaikan dan penurunan secara tidak teratur. Penyimpangan tersebut dapat disebabkan karena adanya sejumlah kontaminan dalam sampel yang turut mempengaruhi berat sampel. Adapun kontaminan yang paling dapat diamati dalam sampel berupa dinding reaktor yang turut terbawa pada proses pengerokan sampel. Untuk menentukan temperatur operasi optimum perlu dilakukan beberapa metode analisa terlebih dahulu, antara lain XRD, SEM, dan EDS.

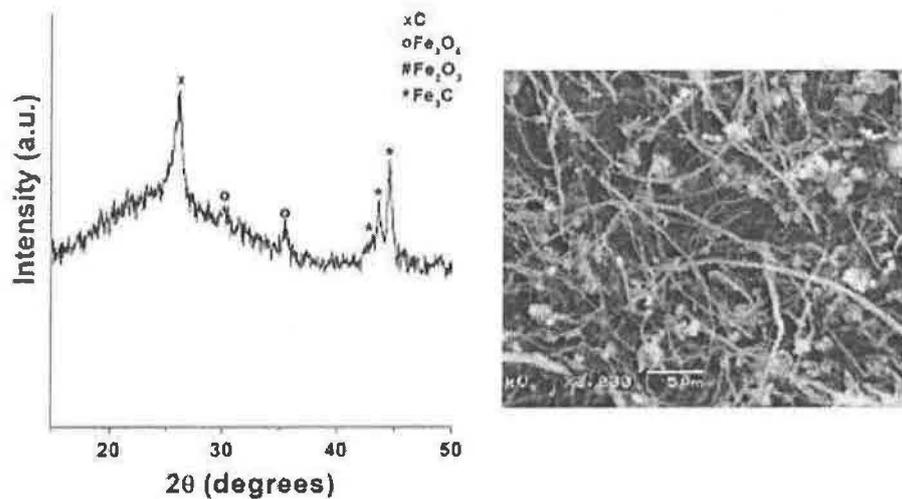
4.1.1 Analisa XRD Variasi Temperatur

Analisa XRD berfungsi untuk mengetahui kristalinitas suatu sampel. Hasil analisa XRD pada berbagai variasi temperatur disajikan pada gambar 4.2. Dapat dilihat dari gambar 4.1 bahwa pada setiap sampel muncul puncak C(002) dan C(100) pada 2θ sebesar 26° dan 43° . Hal tersebut menandakan terbentuknya struktur grafit (carbon sp^2) dalam sampel tersebut (Liu et al., 2014). Penajaman puncak C khususnya C(002) pada setiap sampel menunjukkan adanya peningkatan kristalinitas dari sampel yang dihasilkan. Peningkatan kristalinitas tersebut menandakan adanya nanokarbon material yang tumbuh pada sampel. Pada temperatur 850°C , puncak C(002) yang dihasilkan memiliki intensitas yang jauh lebih tinggi (kristalinitas tinggi) dibandingkan temperatur lainnya. Tingginya intensitas tersebut menunjukkan bahwa adanya nanokarbon material khususnya CNT pada sampel 850°C . Hal ini didukung dengan adanya uji XRD yang dilakukan oleh Schnitzler (2008) yang telah berhasil menumbuhkan CNT dengan menghasilkan ketajaman puncak C(002) yang tinggi (disajikan pada gambar 4.3).

Perbedaan puncak C (002) pada temperatur 850°C dengan variasi temperatur lainnya mengindikasikan bahwa temperatur tersebut merupakan temperatur optimum. Temperatur 850°C memungkinkan CNT untuk tumbuh sedangkan pada temperatur lainnya karbon prekursor cenderung terdekomposisi membentuk karbon amorf. Hal tersebut diperkuat dengan data perbandingan persen kristalinitas dan persen amorphous yang disajikan pada tabel 4.1.



Gambar 4.2 Hasil analisa XRD pada variasi temperatur



Gambar 4.3 Uji XRD Schnitzler (Schnitzler & Zarbin, 2008)

Tabel 4. 1 Persen kristalinitas dan persen amorphous pada variasi temperatur

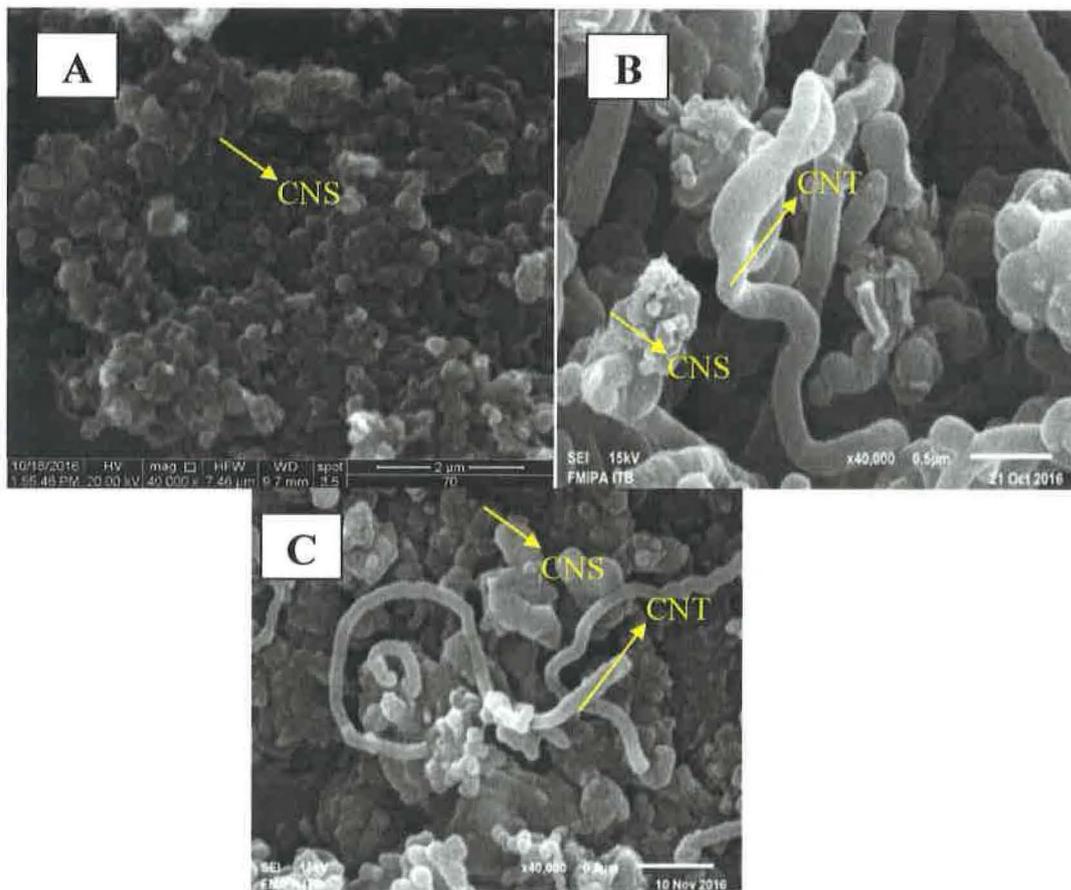
Sampel	% Kristalinitas	% Amorphous
700 °C	37.6%	62.4%
750 °C	46.6%	53.4%
800 °C	38.4%	61.6%
850 °C	57.4%	42.6%

Dapat diamati pada gambar 4.2, selain puncak C, terdapat puncak Fe yang muncul pada 2θ sebesar 35.4° , 42.5° , dan 44.6° . Pada saat proses pirolisis berlangsung, katalis *ferrocene* akan mengalami dekomposisi sesuai dengan reaksi : $\text{Fe}(\text{C}_5\text{H}_5)_2 \rightarrow \text{Fe} + \text{C}_x\text{H}_y$. Atom-atom Fe yang dilepaskan selama proses pirolisis ini akan berfungsi sebagai katalis dalam proses sintesis material karbon nano (Suriani et al., 2010). Selain terjadi dekomposisi katalis *ferrocene*, selama proses pirolisis juga, minyak goreng yang digunakan sebagai sumber karbon akan terdekomposisi menjadi hidrokarbon yang lebih sederhana seperti $\text{C}_x\text{H}_y\text{O}_z$ dan C_xH_y dan akan membentuk CO dan CO_2 (Suriani et al., 2010). Hasil dari dekomposisi katalis dan karbon prekursor diduga akan bereaksi membentuk suatu senyawa Fe. Umumnya senyawa Fe yang terbentuk merupakan magnetit (Fe_3O_4) dan sementit/ besi karbida (Fe_3C) seperti seperti pada penelitian yang dilakukan oleh Schnitzler (2008) (dapat dilihat pada gambar 4.2) dan Hadisaputra, et al. (2016) (hasil tidak ditampilkan).

4.1.2 Analisa SEM Variasi Temperatur

Hasil dari analisa XRD menunjukkan bahwa sampel dengan variasi 700°C , 750°C , dan 800°C memiliki gugus kristalin dan kecenderungan data yang sama namun berbeda dengan sampel 850°C . Berdasarkan hasil analisa XRD tersebut, diambil 2 sampel yaitu sampel pada 700 dan 850°C untuk dilakukan analisa SEM serta sampel 900°C sebagai pembandingan. Analisa SEM digunakan untuk mengetahui bentuk morfologi dari sampel yang dihasilkan. Hasil analisa SEM dengan variasi temperatur disajikan pada gambar 4.4. Dapat dilihat dari gambar 4.4 bahwa temperatur operasi mempengaruhi bentuk morfologi dari hasil yang didapatkan. Pada variasi temperatur 700°C hasil yang didapat berupa *carbon nanospheres* (CNS) sedangkan pada temperatur 850°C dan 900°C hasil yang didapat berupa *carbon nanotubes* (CNT) dan CNS. CNS yang dihasilkan pada setiap sampel membentuk suatu gabungan *spheres* bukan merupakan *spheres* tunggal. CNS memiliki ikatan yang menggantung (*dangling bond*) sehingga CNS memiliki pinggiran yang reaktif (Nieto-Marquez et al., 2010). Pinggiran reaktif tersebut menandakan besarnya energi permukaan yang dimiliki partikel nano karbon yang belum berkordinasi secara sempurna sehingga CNS cenderung saling berikatan satu sama lain dan membentuk suatu aglomerasi. Ukuran dari CNS yang dihasilkan pun turut dipengaruhi oleh temperatur operasi. Dapat dilihat dari gambar 4.4(A) dan 4.4(C), ukuran CNS yang terbentuk pada temperatur 700°C relatif lebih besar dari CNS pada temperatur 900°C . Peningkatan temperatur pada tabung reaktor akan turut meningkatkan energi yang diberikan kepada sistem sehingga proses pemecahan ikatan pada karbon prekursor akan menjadi lebih cepat

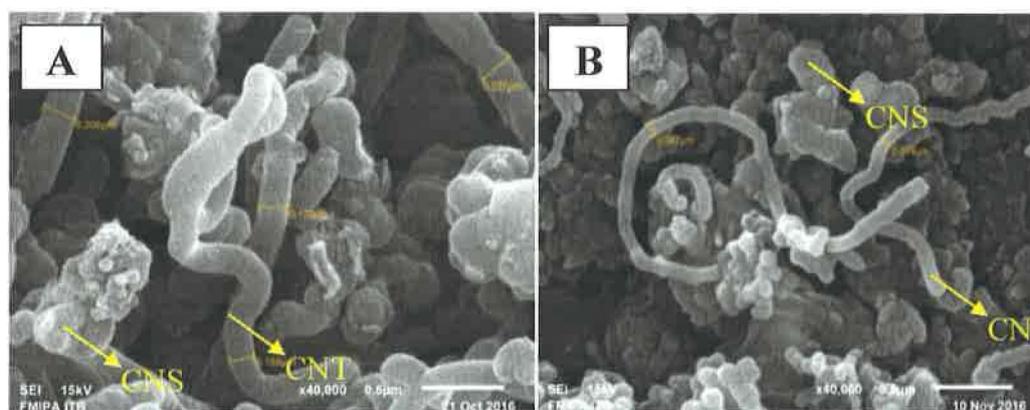
(Afre et al., 2006). Hal tersebut mengakibatkan diameter dari CNS yang dihasilkan relatif menjadi lebih kecil.



Gambar 4.4 Hasil analisa SEM perbesaran 40.000x pada konsentrasi katalis 0,025 gr/ml dan variasi temperatur : 700°C (A) ; 850°C (B) ; dan 900°C (C)

Berbeda dengan sampel pada 700°C, bentuk morfologi dari sampel pada 850°C dan 900°C terdiri dari gabungan antara CNS dan CNT. CNT yang dihasilkan pada temperatur 850°C cenderung lebih banyak dari CNT pada temperatur 900°C namun diameter dari CNT yang dihasilkan pun cenderung lebih besar (disajikan pada gambar 4.5). Dari gambar 4.5 dapat diketahui bahwa pada temperatur 850°C, ukuran CNT berkisar antara 150-200 nm sedangkan pada temperatur 900°C, ukuran CNT berkisar antara 75-100 nm. Peningkatan temperatur pada dinding reaktor akan turut meningkatkan jumlah energi yang diberikan pada sistem sehingga proses dekomposisi karbon prekursor menjadi lebih cepat sehingga diameter yang dihasilkan menjadi lebih kecil. Hal ini didukung dengan penelitian yang dilakukan oleh Wijaya (2015) dimana karbon nano yang dihasilkan memiliki diameter yang semakin kecil seiring meningkatnya temperatur operasi.

Faktor lain yang umumnya mempengaruhi ukuran diameter dari material karbon nano (baik CNS maupun CNT) adalah waktu operasi dimana semakin lama waktu operasi maka diameter akan semakin besar. Hal tersebut dikarenakan apabila semakin lama waktu operasi maka jumlah karbon prekursor yang akan terdekomposisi akan semakin banyak sehingga terjadi penumpukan material karbon nano yang dihasilkan yang mengakibatkan ukuran dari material karbon nano yang dihasilkan semakin besar. Namun pada penelitian ini, waktu operasi pada setiap sampel diseragamkan yaitu waktu nebulisasi selama 30 menit dan waktu sampel berada dalam *furnace* setelah nebulisasi (pendinginan sampel) selama 3 jam sehingga faktor yang akan mempengaruhi ukuran material karbon nano adalah temperatur operasi. Berdasarkan hasil yang didapat dari analisa SEM, temperatur operasi optimum yang didapat yaitu 850°C karena pada temperatur 850°C, terdapat CNT yang berhasil tersintesis dengan jumlah yang relatif lebih banyak.



Gambar 4.5 Diameter CNT pada temperatur 850°C (A) dan 900°C (B)

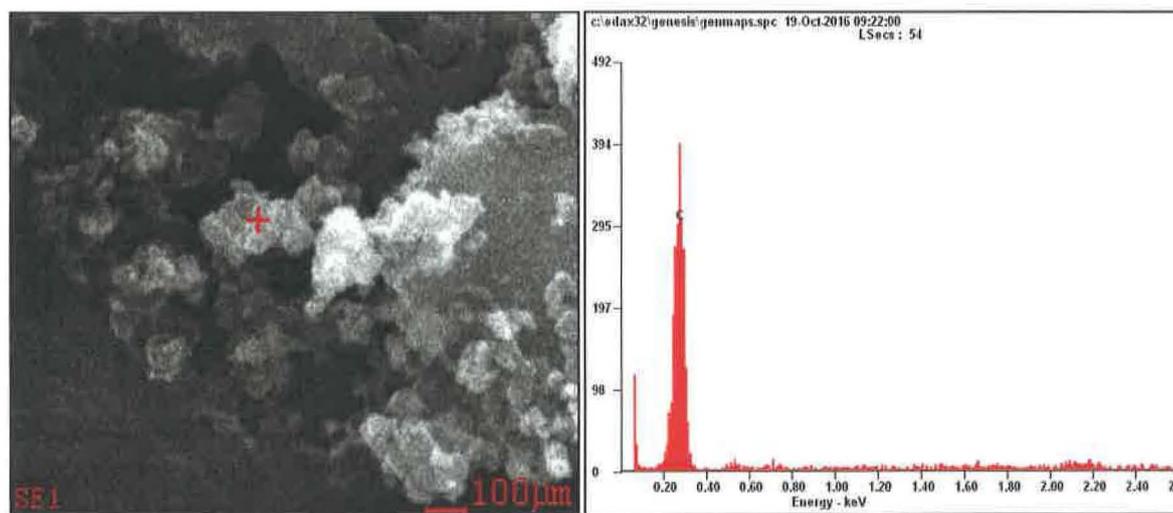
4.1.3 Analisa EDS Variasi Temperatur

Analisa EDS berfungsi untuk mengetahui unsur- unsur yang terdapat di dalam sampel. Hasil dari analisa EDS untuk variasi temperatur disajikan pada tabel 4.2. Konsentrasi katalis *ferrocene* yang digunakan untuk ketiga sampel tersebut sebesar 0,025gr/ml. Dapat dilihat pada tabel 4.2, pada variasi 850°C dan 900°C terdapat unsur Fe dengan jumlah yang relatif sama (diduga berasal dari katalis *ferrocene*). Namun terjadi penyimpangan pada variasi 700°C dimana unsur Fe tidak muncul. Hal tersebut dapat disebabkan oleh distribusi katalis yang kurang merata pada permukaan sampel yang dianalisa. Analisa EDS merupakan analisa yang bersifat lokal yaitu analisa hanya dilakukan pada bagian tertentu dari sampel seperti yang ditunjukkan pada gambar 4.6. Selain itu, pada analisa EDS, sampel akan ditembakkan dengan sinar dengan kedalaman tertentu. Tidak terbacanya unsur Fe pada variasi temperatur 700°C juga dapat disebabkan

karena material karbon nano yang terbentuk menutupi unsur Fe hingga ketebalan tertentu sehingga unsur Fe tidak dapat terbaca. Dari tabel 4.2 juga dapat dilihat pada variasi temperatur 850 °C terdapat unsur Cr (Chromium) dan O. Unsur Cr tersebut diduga berasal dari dinding reaktor yang terbuat dari stainless steel yang ikut terbawa pada saat proses pengerokan sampel dari dinding reaktor. Unsur O yang terbentuk diduga berasal dari proses dekomposisi karbon prekursor yang bereaksi dengan Fe hasil dekomposisi katalis *ferrocene* yang membentuk senyawa magnetit.

Tabel 4.2 Hasil analisa EDS pada variasi temperatur

Temperatur (°C)	Konsentrasi Katalis (gr/ml)	% atomic			
		C	Fe	O	Cr
700	0,025	100	0	0	0
850	0,025	96,94	0,83	1,61	0,62
900	0,025	99,09	0,91	0	0



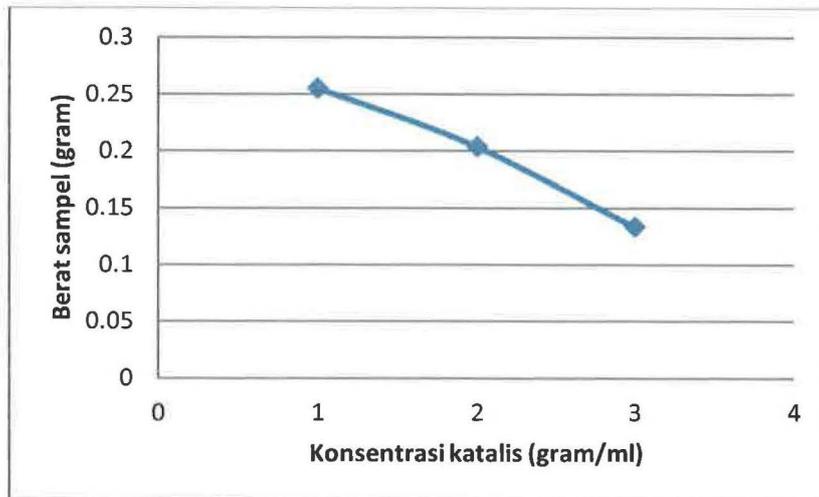
Gambar 4.6 Contoh analisa EDS pada sampel 700°C

Berdasarkan hasil analisa SEM, EDS, XRD, serta berat dari sampel, dapat diketahui bahwa temperatur 850 °C merupakan temperatur optimum.

4.2 Variasi Konsentrasi Katalis

Percobaan variasi konsentrasi katalis dilakukan pada temperatur 850°C dengan variasi konsentrasi katalis sebesar 0,015 gr/ml, 0,020 gr/ml, dan 0,025 gr/ml. Sama seperti

percobaan variasi temperatur, sampel yang diperoleh pada percobaan ini di timbang terlebih dahulu untuk mengetahui berat sampel yang didapat. Adapun hasil penimbangan tersebut disajikan pada gambar 4.7.



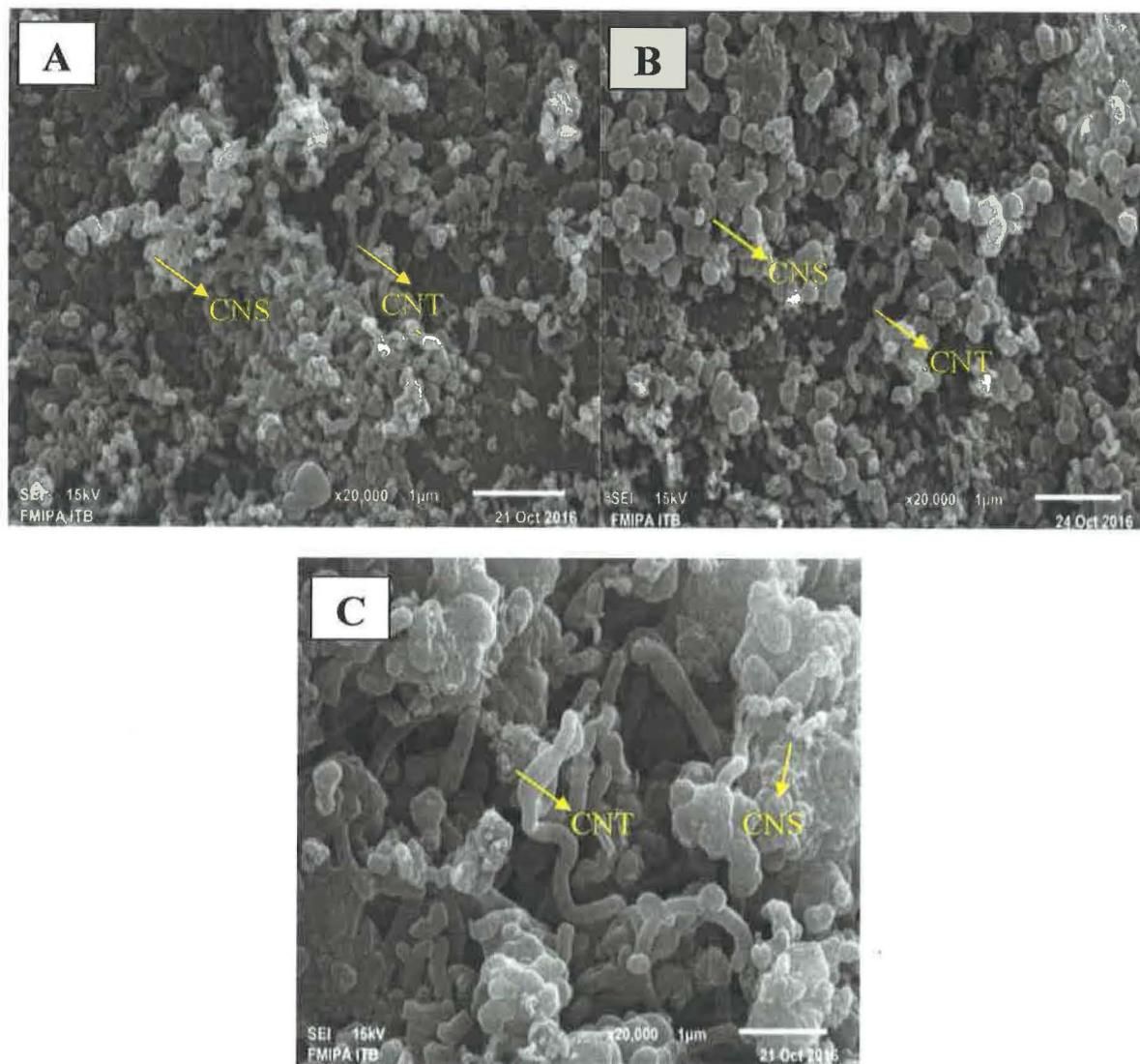
Gambar 4. 7 Berat sampel percobaan variasi konsentrasi katalis

Dari gambar 4.7, dapat dilihat bahwa semakin tinggi konsentrasi katalis *ferrocene* maka berat sampel yang didapat semakin kecil. Hal tersebut dapat disebabkan karena pada konsentrasi *ferrocene* yang tinggi, jumlah gugus Fe yang terurai akan lebih banyak. Gugus Fe tersebut kemudian akan berkumpul dan tumbuh menjadi kelompok gugus yang besar dengan efek katalitik yang lebih lemah dibandingkan gugus Fe yang kecil sehingga jumlah sampel yang didapatkan menurun seiring bertambah konsentrasi katalis (Resasco et al., 2004).

Selain karena berkurangnya efek katalitik dari gugus Fe, penambahan jumlah katalis *ferrocene* tentunya akan meningkatkan kepekatan dari karbon prekursor. Berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Hadisaputra (2016), peningkatan kepekatan dari karbon prekursor cukup berpengaruh secara signifikan terhadap proses nebulasi. Dengan meningkatnya jumlah katalis yang digunakan maka viskositas dari karbon prekursor akan semakin tinggi sehingga karbon prekursor akan semakin sulit untuk ternebulisasi. Hal tersebut mengakibatkan jumlah sampel yang dihasilkan cenderung menurun seiring meningkatnya konsentrasi katalis. Untuk mengetahui pengaruh konsentrasi katalis terhadap material karbon nano yang dihasilkan, perlu dilakukan analisa karakteristik. Adapun analisa karakteristik yang dilakukan adalah SEM dan EDS.

4.2.1 Analisa SEM Variasi Konsentrasi Katalis

Analisa SEM dilakukan pada sampel dengan variasi konsentrasi katalis sebesar 0,015 gr/ml, 0,020 gr/ml, dan 0,025 gr/ml pada temperatur 850°C. Hasil dari analisa SEM dengan variasi konsentrasi katalis dapat dilihat pada gambar 4.8.



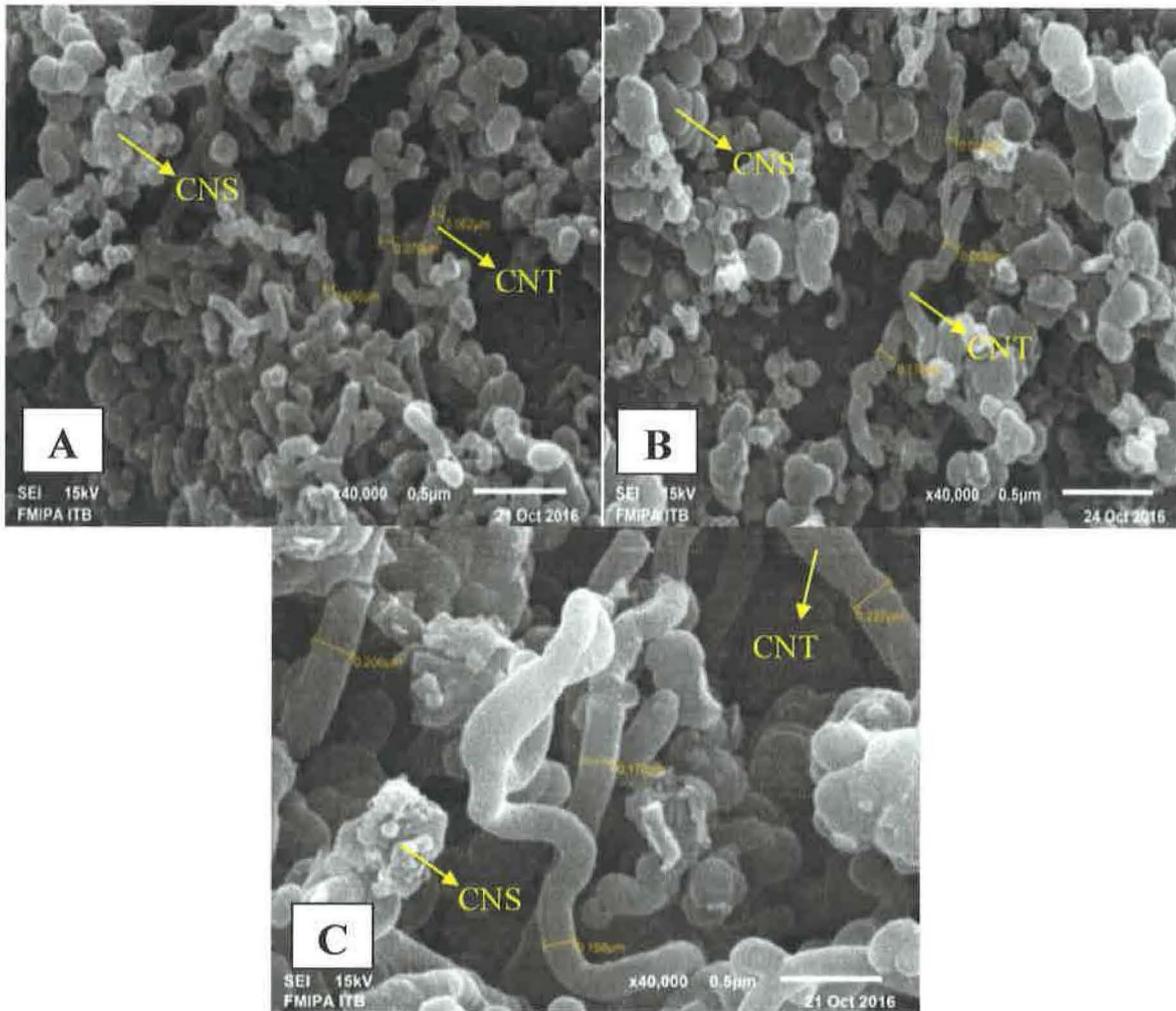
Gambar 4.8 Hasil analisis SEM 850°C perbesaran x20.000, konsentrasi katalis 0,015 g/ml (A); 0,020 g/ml (B); 0,025 g/ml (C)

Dari gambar 4.8, dapat diketahui bahwa pada ketiga variasi konsentrasi katalis terbentuk CNT dan CNS dengan ukuran dan bentuk yang berbeda. Pada variasi 0,015 gr/ml, CNS yang tersintesis saling berikatan membentuk suatu aglomerasi yang lebih beraturan (seperti membentuk suatu rantai), sedangkan pada variasi 0,020 gr/ml dan 0,025 gr/ml CNS yang terbentuk membentuk suatu aglomerasi yang tidak beraturan (menggumpal). Selain CNS, berdasarkan gambar 4.8, dapat dilihat juga bahwa jumlah CNT yang dihasilkan pada konsentrasi 0,015 gr/ml lebih banyak dibandingkan pada konsentrasi 0,025 gr/ml. Hal ini

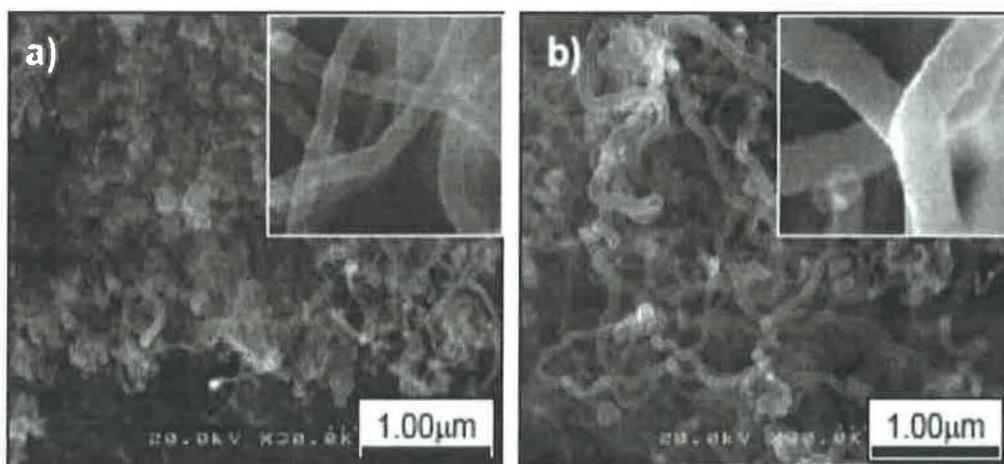
disebabkan karena kondisi lingkungan operasi sangat menentukan bentuk dari material karbon nano yang dihasilkan dimana konsentrasi katalis *ferrocene* yang rendah lebih memungkinkan CNT untuk tumbuh (Norazian et al., 2014). Peranan katalis dalam proses pembentukan material karbon nano adalah untuk membantu proses dekomposisi karbon prekursor sehingga berlangsung lebih cepat (Liu et al., 2014). Semakin banyak jumlah katalis yang digunakan maka akan lebih banyak karbon prekursor yang terdekomposisi. Hal tersebut menyebabkan material karbon nano yang terbentuk menjadi menggumpal, memiliki ukuran yang lebih besar, dan akhirnya akan menutupi permukaan katalis sehingga mengurangi sifat katalitik katalis.

CNT yang dihasilkan pada setiap variasi konsentrasi katalis memiliki ukuran diameter yang berbeda dimana semakin besar konsentrasi katalis maka diameter CNT akan semakin besar. Pada konsentrasi 0,015 gr/ml diameter yang dihasilkan sekitar 50-70 nm, pada konsentrasi 0,020 g/ml diameter yang dihasilkan sekitar 56-112 nm, sedangkan pada konsentrasi 0,025 g/ml diameter yang dihasilkan sekitar 258-227 nm (dapat diamati pada gambar 4.9). Hasil serupa juga didapat pada penelitian yang dilakukan oleh Abdullah, et al. (2004) dimana CNT yang diperoleh memiliki ukuran diameter yang semakin besar seiring dengan meningkatnya konsentrasi katalis (hasil disajikan pada gambar 4.10). Hal tersebut disebabkan karena semakin tingginya konsentrasi katalis maka semakin banyak katalis yang terdekomposisi menjadi unsur Fe. Apabila jumlah unsur Fe semakin banyak, maka akan membentuk sebuah *cluster* yang besar sehingga CNT yang tumbuh memiliki diameter yang besar (Wal & Hall, 2002). Mengenai konduksi elektrik, CNT mempunyai karakteristik yang unik dimana konduktivitas dapat bersifat logam atau semikonduktor dan hal ini dicapai apabila diameter CNT kecil (Yuan, 2008), selain itu reaktivitas kimia yang baik dicapai pada CNT berdiameter kecil (Hadisaputra, 2015), selain itu juga diameter CNT yang kecil akan baik digunakan pada aplikasi *hydrogen storage* dan aplikasi lainnya.

Selain diameter CNT, pada gambar 4.9, dapat diketahui juga bahwa setiap CNT yang terbentuk memiliki bentuk yang berbeda-beda dimana ada CNT lurus dan ada yang bercabang/melengkung. Perbedaan bentuk CNT tersebut tidak lepas dari peranan katalis. Pada saat proses pirolisis berlangsung, katalis *ferrocene* akan turut terdekomposisi menjadi unsur Fe dan akan membentuk suatu *cluster*. Susunan dari *cluster* atom besi tersebut akan menjadi daerah baru untuk pertumbuhan CNT. Hal tersebut memungkinkan CNT untuk tumbuh membentuk suatu cabang pada CNT yang telah tumbuh lurus.



Gambar 4.9 Hasil analisis SEM 850°C perbesaran x40.000, konsentrasi katalis 0,015 g/ml (A); 0,020 g/ml (B); 0,025 g/ml (C)



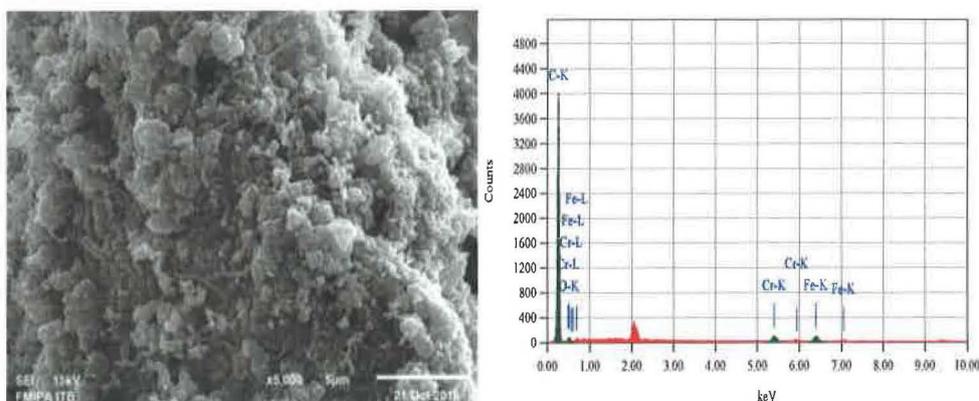
Gambar 4.10 Hasil analisis Mikrajuddin Abdullah, et al. Dengan konsentrasi katalis *ferrocene* : 0,75 %wt (a) dan 1,5 %wt (b) (Abdullah et al., 2004)

4.2.2 Analisa EDS Variasi Konsentrasi Katalis

Analisa EDS pada variasi konsentrasi katalis dilakukan pada ketiga variasi sampel (hasil disajikan pada tabel 4.3). Pada variasi katalis 0,025 gr/ml terdapat unsur O dan Cr dengan % atomik masing- masing sebesar 1,61 % dan 0,62%. Munculnya unsur Cr pada sampel tersebut diduga berasal dari dinding reaktor yang terbuat dari stainless steel yang ikut terbawa pada saat proses pengerokkan sampel dari dinding reaktor. Sedangkan unsur O diduga berasal dari proses dekomposisi karbon prekursor yang bereaksi dengan atom Fe dan membentuk magnetite. Dapat dilihat pada tabel 4.3, pada konsentrasi katalis 0,015 gr/ml unsur yang muncul hanya unsur C, pada konsentrasi katalis 0,020 gr/ml unsur yang muncul yaitu unsur C dan Fe, sedangkan pada konsentrasi katalis 0,025 gr/ml unsur yang muncul adalah unsur C, Fe, O, dan Cr. Perbedaan unsur- unsur tersebut disebabkan karena kurang meratanya unsur- unsur tersebut pada permukaan sampel. Contoh analisa EDS pada temperatur 850°C dan konsentrasi katalis 0,025 gr/ml disajikan pada gambar 4.11.

Tabel 4. 3 Hasil analisa EDS pada temperatur 850°C dan konsentrasi katalis bervariasi

Konsentrasi katalis (gr/ml)	Temperatur operasi (°C)	% atomic			
		C	Fe	O	Cr
0,015	850	100	0	0	0
0,020	850	99,49	0,51	0	0
0,025	850	96,94	0,83	1,61	0,62



Gambar 4.11 Hasil analisis EDS pada 850°C dan konsentrasi katalis 0,025 gr/ml

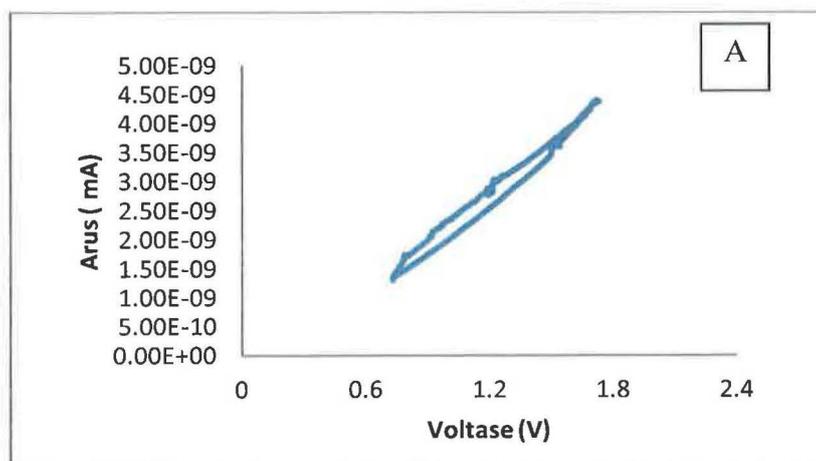
Unsur Fe yang muncul pada analisa EDS pada variasi konsentrasi katalis diduga berasal dari katalis *ferrocene*. Jumlah unsur Fe pada konsentrasi 0,015 gr/ml, 0,020 gr/ml, dan 0,025 gr/ml masing- masing sebesar 0 %, 0,51% , dan 0,85% (persen merupakan

persen atomik dimana data tabel 4.3 pada konsentrasi 0,025 gr/ml telah diolah dengan hanya menghitung persen C dan Fe saja). Dari hasil tersebut dapat dilihat bahwa jumlah unsur Fe semakin lama semakin meningkat seiring dengan meningkatnya jumlah katalis *ferrocene*. Namun terdapat penyimpangan pada konsentrasi 0,015 gr/ml dimana unsur Fe tidak muncul. Penyimpangan tersebut disebabkan karena tidak meratanya unsur Fe pada permukaan sampel dan unsur Fe yang terbentuk tertutupi material karbon nano hingga ketebalan tertentu sehingga tidak dapat terbaca pada analisa EDS.

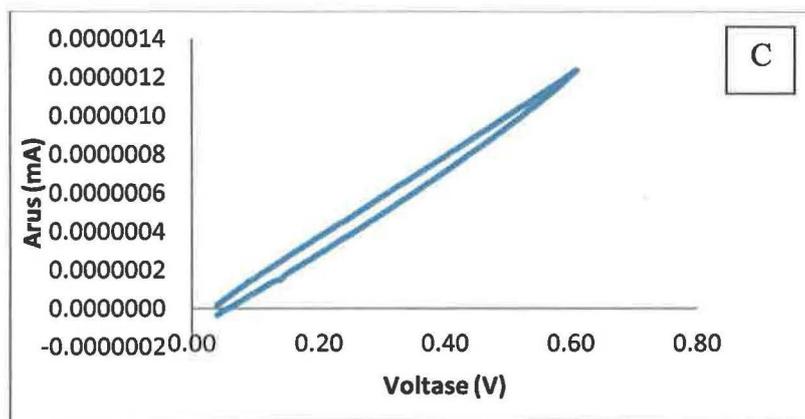
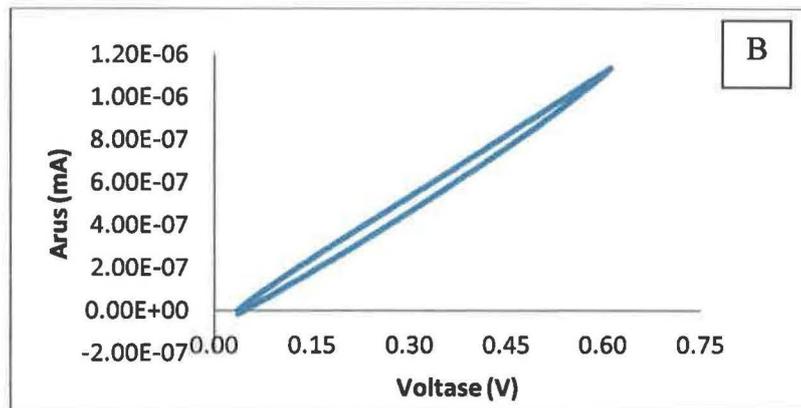
Berdasarkan hasil analisa SEM dan EDS, dapat diketahui bahwa konsentrasi katalis *ferrocene* 0,015 gr/ml merupakan konsentrasi yang paling optimum. Hal tersebut dikarenakan pada konsentrasi 0,015 gr/ml jumlah CNT yang dihasilkan lebih banyak (dapat dilihat dari hasil analisa SEM) dan pengotor yang dihasilkan di dalam sampel lebih sedikit (dapat dilihat dari analisa EDS).

4.3. Analisa CV

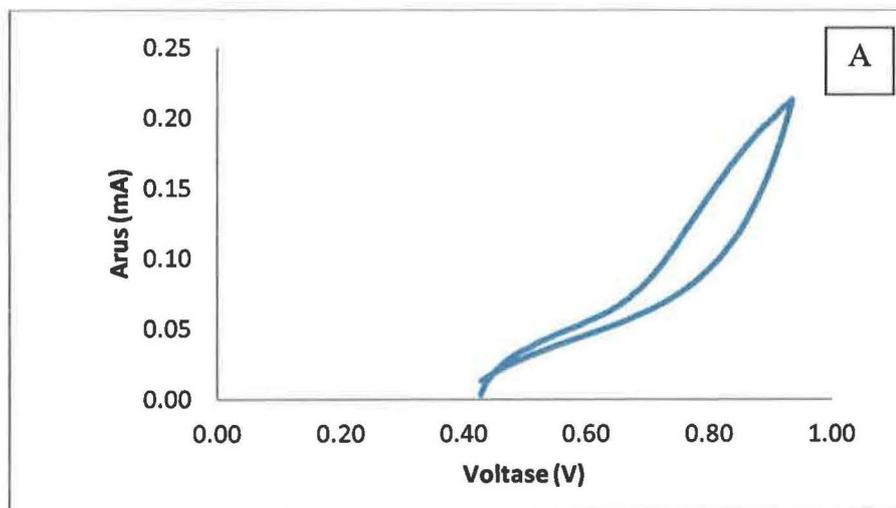
Analisa CV dilakukan untuk mengetahui karakteristik elektrokimia dan kapasitansi dari elektroda. Analisa CV dilakukan pada yaitu 3 sampel dengan kondisi temperatur optimum (850°C) dan konsentrasi katalis *ferrocene* sebesar 0,015 gr/ml ; 0,020 gr/ml; dan 0,025 gr/ml serta CNT komersial yang digunakan sebagai pembandingan. Ketiga sampel tersebut akan digunakan sebagai elektroda negatif sedangkan elektroda positif yang digunakan berupa nikel oksida (NiO). Larutan elektrolit yang digunakan pada anoda dan katoda adalah KOH 6M. Analisa CV ini dilakukan menggunakan Potensiostat Gamry V3000. Hasil analisa CV yang dilakukan pada penelitian ini disajikan pada gambar 4.12, gambar 4.13, dan gambar 4.14.



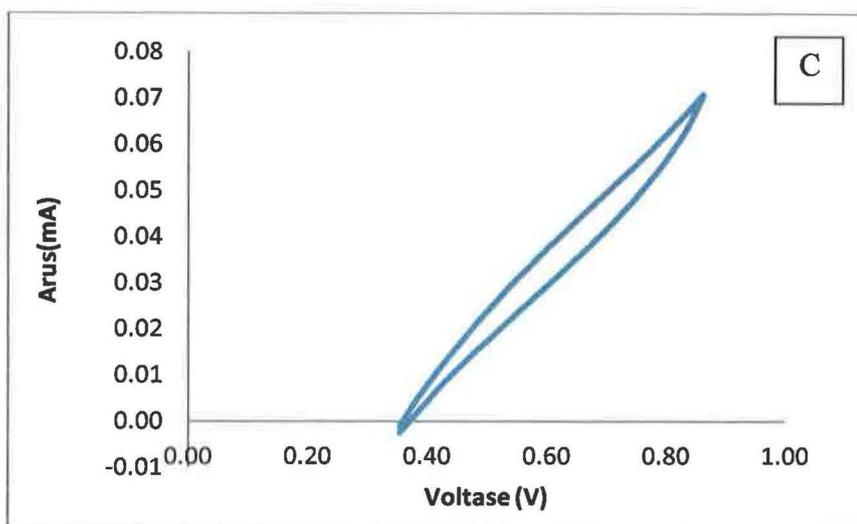
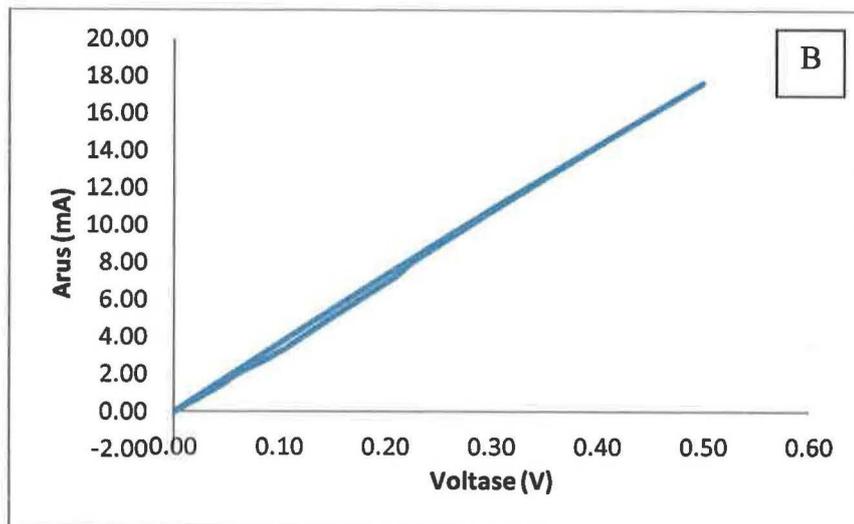
Gambar 4. 12 Grafik CV sampel 850°C dengan konsentrasi katalis 0,015 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C)



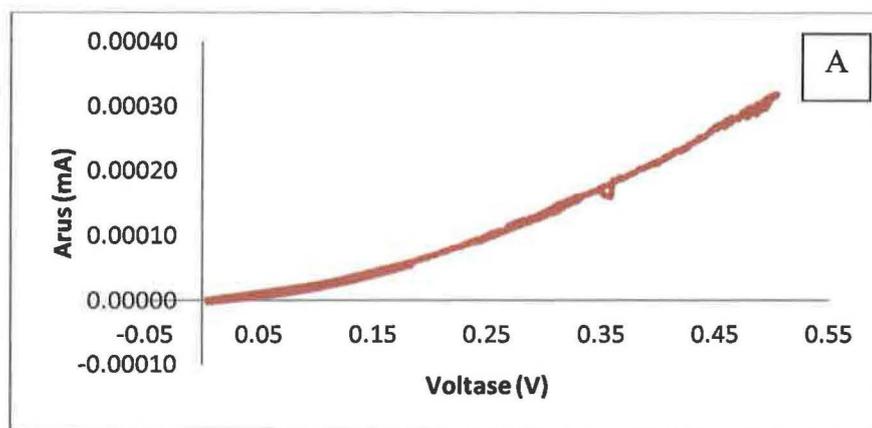
Gambar 4.12 Grafik CV sampel 850 °C dengan konsentrasi katalis 0,015 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C) (lanjutan)



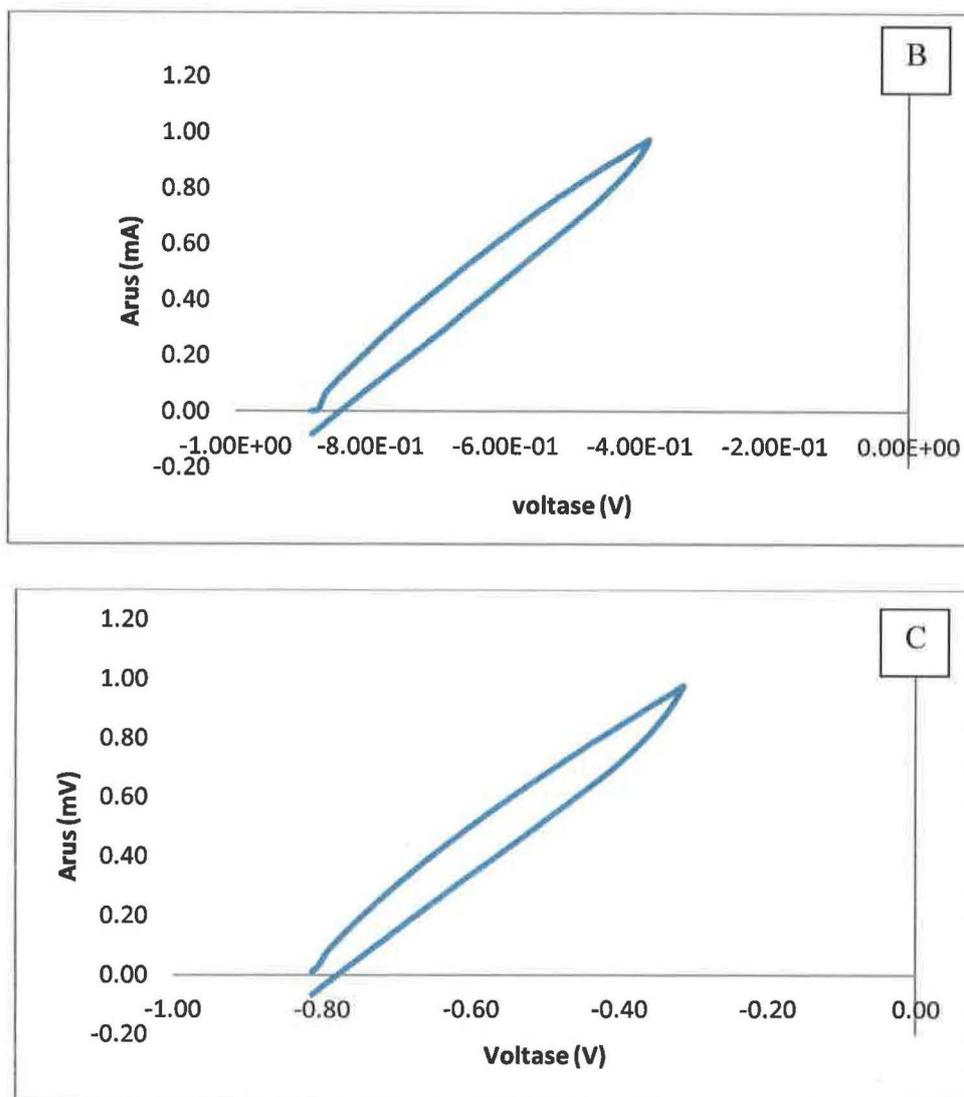
Gambar 4.13 Grafik CV sampel 850 °C dengan konsentrasi katalis 0,020 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C)



Gambar 4.13 Grafik CV sampel 850 °C dengan konsentrasi katalis 0,020 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C) (lanjutan)



Gambar 4. 14 Grafik CV sampel 850 °C dengan konsentrasi katalis 0,025 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C)



Gambar 4.14 Grafik CV sampel 850 °C dengan konsentrasi katalis 0,025 gr/ml pada scan rate 2mV/s (A); 5mV/s (B); dan 10 mV/s (C) (lanjutan)

Dapat dilihat dari gambar 4.12, 4.13, dan 4.14 bahwa secara kualitatif, bentuk kurva yang didapatkan belum mendekati bentuk ideal yaitu jajargenjang(bentuk kurva ideal dari superkapasitor dapat dilihat pada gambar 2.25 (a) dan (b)). Ruang kosong atau jarak pisah antara *charge* dan *discharge* pada kurva akan menentukan seberapa besar kapasitas dari suatu sampel, semakin besar ruang kosong/ jarak pisah yang didapat, semakin besar pula kapasitas sampel yang didapatkan. Perbedaan bentuk kurva yang didapat dengan kondisi ideal menandakan adanya penyimpangan energi optimum selama proses *fast charge* dan *discharge*. Penyimpangan ini dapat disebabkan karena pembuatan sel elektroda yang kurang sempurna dan tidak merata, terjadi kontak antara elektrolit dengan udara yang

dapat mengganggu hantaran listrik, dan adanya guncangan atau angin yang mengganggu sampel sehingga data yang dihasilkan tidak akurat.

Apabila hasil penelitian yang didapat dibandingkan dengan kurva CV dari CNT komersial yang di analisis oleh Hadisaputra (2015) (dapat dilihat pada gambar 2.25 (c)), secara kualitatif, kurva sampel yang paling mendekati CNT komersial adalah sampel 850°C dengan konsentrasi katalis 0.020 g/ml dengan scan rate 2 dan 5. Namun jika dibandingkan secara kuantitatif (hasil disajikan pada tabel 4.4), besar kapasitansi yang diperoleh pada sampel jauh lebih kecil jika dibandingkan dengan CNT komersial. Selain itu, dapat dilihat dari tabel 4.4 bahwa terdapat penyimpangan pada hasil analisa dimana tidak adanya kecenderungan data antara kenaikan nilai scan rate dengan besar kapasitansi yang didapat. Pada nilai *scan rate* yang tinggi, ion akan bertumbukan sangat cepat namun cenderung tidak teratur mencapai lapisan batas elektroda-elektrolit sehingga *double layer* yang terbentuk tidak sempurna dan dapat mengurangi nilai kapasitansi (Yandra, 2015). Adapun penyimpangan- penyimpangan yang terjadi disebabkan karena digunakannya SS mesh pada elektroda positif yang konduktivitasnya (kemampuan menghantarkan arus listrik) lebih kecil daripada *carbon cloth* yang digunakan oleh Hadisaputra (2015), sehingga muatan listrik nya kurang maksimal. selain itu, kerapatan antar elektroda tidak rapat dan permukaan ss mesh tidak tertutup sempurna oleh sampel. Tingginya kapasitansi juga dipengaruhi oleh luas permukaan elektroda, karena pada penelitian ini tidak dilakukan pengujian BET, sehingga luas permukaan sampel yang diuji tidak diketahui dan tidak dapat dilihat pengaruhnya terhadap kapasitansi yang dihasilkan.

Tabel 4. 4 Kapasitansi sel dalam F/g sampel

Variasi	2 mV/s	5 mV/s	10 mV/s
850°C, 0,015 gr/ml	1.2×10^{-5}	$9,37 \times 10^{-7}$	$5,11 \times 10^{-7}$
850°C, 0,020 gr/ml	0.60	25.06	0.05
850°C, 0,025 gr/ml	$7,18 \times 10^{-4}$	1.11	0.56
CNT Komersial	37,22	14,25	8,14