

# Pemurnian Carbon Nanotubes menggunakan Larutan HNO<sub>3</sub> dengan metode Pencucian Biasa dan Reflux

Agus Subagio<sup>1</sup>, Pardoyo<sup>2</sup>, Priyono<sup>1</sup>, Rike Yudianti<sup>3</sup>, Khasan Rowi<sup>2</sup>, M. Imam Taufiq<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Jurusan Fisika, Fakultas Sains dan Matematika, Universitas Diponegoro

<sup>2</sup> Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Matematika, Universitas Diponegoro

<sup>3</sup> Pusat Penelitian Fisika – LIPI

Alamat email: [agus\\_fadhil@yahoo.com](mailto:agus_fadhil@yahoo.com)

**Abstrak** – Telah dilakukan penelitian berkaitan pemurnian carbon nanotubes (CNT) dengan metode pencucian biasa dan reflux menggunakan larutan HNO<sub>3</sub>. Pemurnian menggunakan metode pencucian biasa dilakukan dengan memasukkan CNT ke dalam 25 ml larutan HNO<sub>3</sub> dengan variasi konsentrasi 25, 45 dan 65% di dalam gelas beker. Selanjutnya dilakukan pengadukan dan didiamkan selama 30 menit. Hasil pencucian disaring dengan kertas saring dan residunya dikeringkan di dalam oven dengan temperatur 120°C selama 1 jam. Sedangkan metode reflux dilakukan pada temperatur 100°C selama 4 jam menggunakan larutan HNO<sub>3</sub> dengan variasi konsentrasi 25, 45 dan 65%. CNT hasil pemurnian selanjutnya dikeringkan di dalam oven dengan temperatur 120°C selama semalam. Carbon nanotube sebelum dan sesudah pemurnian dianalisis menggunakan Scanning Electron Microscopy (SEM) dan Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS). Hasil penelitian menunjukkan bahwa tingkat kemurnian CNT yang paling baik dengan menggunakan metode pencucian reflux pada konsentrasi HNO<sub>3</sub> sebesar 65%.

**Kata kunci:** carbon nanotubes, pemurnian, reflux, konsentrasi HNO<sub>3</sub>

**Abstract** – It has been conducted research of purification carbon nanotubes (CNTs) with regular washing and reflux method using HNO<sub>3</sub> solution. Purification using regular washing done by entering CNTs into 25 ml HNO<sub>3</sub> solution in the glass beaker with variation of HNO<sub>3</sub> concentrations of 25, 45 and 65%. Further stirring and allowed to stand for 30 minutes. Results of CNTs were filtered with filter paper and the residue was dried in an oven with a temperature of 120°C for 1 hour. While reflux method at temperatures 100 ° C for 4 hours using a solution of HNO<sub>3</sub> with concentration variation 25, 45 and 65%. CNT purification results then dried in an oven with a temperature of 120 ° C for overnight. Carbon nanotubes as a result both before and after purification were analyzed by Scanning Electron Microscopy (SEM) and Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS). The results showed that the level of best of purity CNTs was reflux washing using HNO<sub>3</sub> concentration by 65%.

**Key words:** carbon nanotubes, purification, reflux, HNO<sub>3</sub> concentration

## I. PENDAHULUAN

Teknologi nano saat ini merupakan bidang penelitian yang sangat diminati untuk dikaji secara lebih mendalam. Hal ini disebabkan oleh aplikasi teknologi nano yang mampu merambah ke berbagai aspek, seperti bidang elektronika, material, biologi, kimia, kedokteran, militer dan lain-lainnya telah membuat teknologi tersebut semakin populer dan menjadi trend teknologi saat ini. Teknologi nano sendiri biasanya merupakan aplikasi dari berbagai macam material berukuran nanometer (nm) yang dapat dimanfaatkan untuk berbagai keperluan tersebut. Salah satu nanomaterial yang sangat luas aplikasinya adalah carbon nanotubes (CNT).

Sejumlah metode fabrikasi dapat digunakan untuk menumbuhkan material CNT, seperti metode *chemical vapor deposition* (CVD) [1], *laser ablation* [2], *spray-pyrolysis* [3]. Khusus untuk sintesis CNT dengan metode *spray-pyrolysis* biasanya menggunakan sumber karbon berupa benzena (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>) dengan katalis ferrocene (Fe(C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>).

Dalam sintesis CNT dengan metode *spray-pyrolysis*, biasanya hasil sintesis masih mengandung zat-zat pengotor

seperti logam katalis, karbon amorf dan sisa-sisa reaktan yang tidak terpirolisis. Adanya zat-zat pengotor tersebut menyebabkan tingkat kemurnian carbon nanotubes menjadi rendah sehingga menurunkan kualitasnya, karena pengotor-pengotor tersebut mengganggu sebagian besar sifat CNT yang diinginkan (Rosario, dkk, 2009).

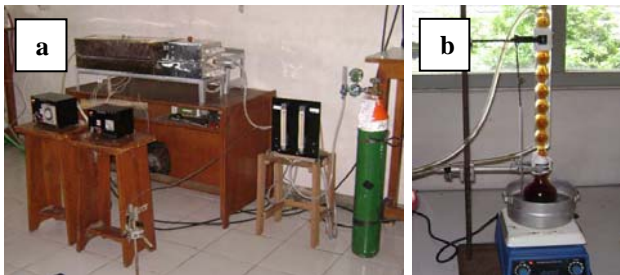
Material CNT dengan tingkat kemurnian tinggi diperlukan dalam aplikasinya pada berbagai bidang ilmu pengetahuan di antaranya di bidang elektronik (sensor kimia-fisika, biosensor, kapasitor, transistor), kimia (elektroda, penyimpan gas hidrogen, baterai litium, filter, membran separasi, katalis pembantu, dan adsorben). Untuk mendapatkan CNT dengan kemurnian tinggi biasanya diperlukan metode pemurnian yang rumit dan kurang efisien, seperti purifikasi magnetik, mikro filtrasi, pemanasan pada suhu yang sangat tinggi [4]. Oleh karena itu, penelitian untuk mendapatkan metode pemurnian yang sederhana dan efisien dengan hasil yang baik penting untuk dilakukan.

Pada makalah ini dilaporkan hasil pemurnian CNT dengan metode asam baik dengan pencucian biasa maupun dengan pencucian refluks menggunakan larutan HNO<sub>3</sub>.

Optimasi terhadap parameter konsentrasi HNO<sub>3</sub> dilakukan untuk mendapatkan kondisi pemurnian yang maksimal.

**II. METODE PENELITIAN/EKSPERIMEN**

Sintesis CNT dilakukan menggunakan metode *spray pyrolysis* dengan mencampurkan 0,6 gram *ferrocene* dan 10 ml benzene yang selanjutnya dispray ke dalam tabung kuarsa yang ditempatkan di dalam furnace pada temperatur 900°C [3]. Gambar 1a menunjukkan sistem *spray pyrolysis* yang digunakan untuk memproduksi CNT, sedangkan gambar 1b menunjukkan sistem reflux yang digunakan untuk proses pemurnian CNT.



**Gambar 1.** (a). Sistem *spray pyrolysis* yang digunakan untuk memproduksi CNT dan (b) sistem reflux yang digunakan untuk proses pemurnian CNT

Material CNT hasil sintesis dengan metode *spray-pyrolysis* selanjutnya dimurnikan menggunakan larutan HNO<sub>3</sub> dengan dua metode, yaitu dicuci biasa dan direflux. Pencucian biasa dilakukan dengan pengambilan 0,1 gram CNT, kemudian dimasukkan ke dalam 25 ml larutan HNO<sub>3</sub> dengan konsentrasi divariasi 25, 45 dan 65% di dalam gelas beker dan dilakukan pengadukan. Selanjutnya didiamkan selama 30 menit. Hasil pencucian disaring dengan kertas saring dan residunya dikeringkan di dalam oven dengan temperatur 120°C selama 1 jam.

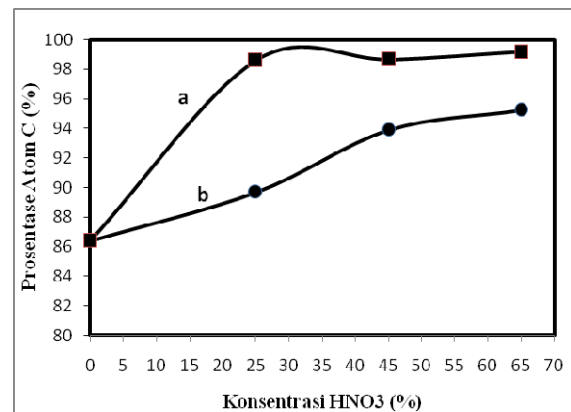
Pencucian dengan reflux dilakukan dengan 50 mL larutan HNO<sub>3</sub> selama 4 jam pada temperatur 100°C. Konsentrasi larutan HNO<sub>3</sub> yang digunakan adalah 25, 45 dan 65%. Variasi konsentrasi asam nitrat untuk mengoksidasi Fe pada CNT dilakukan, karena kerja oksidasi asam nitrat bergantung pada konsentrasinya [5]. Hasil refluks kemudian disaring dan residunya dicuci menggunakan akuades sampai PH netral. CNT hasil pemurnian kemudian dikeringkan di dalam oven dengan temperatur 120°C selama semalam. Hasil pemurnian masing-masing metode selanjutnya dianalisis menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy* (EDS).

**III. HASIL DAN PEMBAHASAN**

Pemurnian menggunakan asam kuat ini dilakukan dengan tujuan untuk menghilangkan pengotor-pengotor yang dihasilkan saat sintesis CNT menggunakan metode *spray pyrolysis*, diantaranya adalah logam Fe, sisa ferrocene dan sisa benzene yang tidak terpyrolisis. Dalam penelitian ini, pemurnian dilakukan dengan metode pencucian

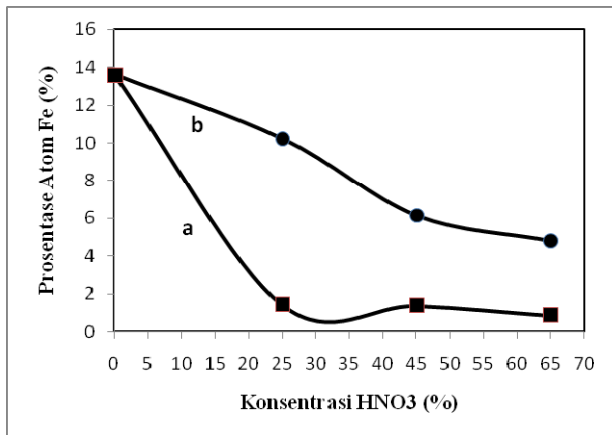
menggunakan asam biasa dan reflux. Pemurnian menggunakan asam merupakan metode yang cukup efektif dan efisien untuk menghilangkan pengotor-pengotor di dalam CNT. Larutan HNO<sub>3</sub> dipilih sebagai larutan pencuci karena sifatnya asam kuat yang mudah terionisasi menjadi H<sup>+</sup> dan NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, mudah menguap dan tidak melarutkan atau merusak struktur CNT yang dimurnikan. Selain itu, beberapa logam seperti Al, Fe dan Cu menjadi bersifat pasif apabila dioksidasi di dalam HNO<sub>3</sub>. Sifat pasif dari logam tersebut disebabkan karena logam tertutupi oleh lapisan yang merintanginya, sehingga logam Fe yang menempel pada ujung CNT akan dapat terpisahkan. Selain itu, pemurnian dengan asam juga mampu mengurangi karbon-karbon yang tidak berbentuk tabung nano [6]. Penggunaan asam nitrat dengan konsentrasi yang pekat dapat merusak sebagian besar dari struktur karbon tersebut. Oleh karena itu optimasi konsentrasi HNO<sub>3</sub> sebagai larutan pencuci dilakukan.

Gambar 2 dan 3 menunjukkan grafik hasil karakterisasi EDX yang menginformasikan perubahan prosentase atom C maupun Fe pada sampel CNT yang dicuci dengan metode pencucian biasa maupun reflux.



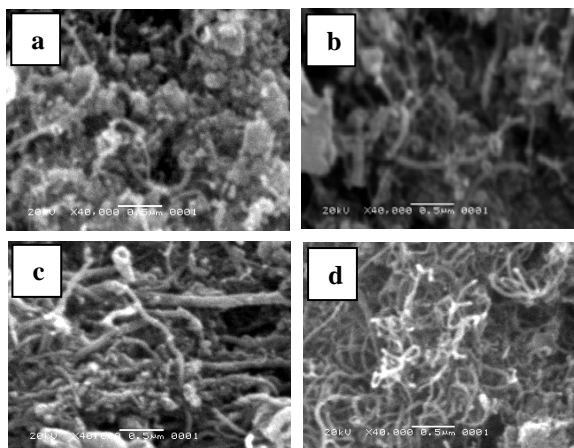
**Gambar 2.** Grafik hasil karakterisasi EDX terkait prosentase atom C pada sampel CNT yang dicuci dengan (a) metode reflux dan (b) metode biasa.

Semakin tinggi konsentrasi larutan HNO<sub>3</sub> yang digunakan dalam pemurnian CNT maka prosentase kandungan unsur karbon (C) semakin besar dan kandungan logam Fe semakin berkurang. Hal ini terjadi karena jika konsentrasi HNO<sub>3</sub> yang digunakan semakin besar, maka kemampuan HNO<sub>3</sub> untuk mengoksidasi Fe juga semakin besar, sehingga Fe sisa *ferrocene* yang terlarut bersama larutan HNO<sub>3</sub> akan semakin banyak yang terpisahkan ke dalam filtratnya, sehingga tingkat kemurnian CNT yang dihasilkan juga semakin besar. Namun demikian dari kedua metode yang digunakan, terlihat bahwa metode pemurnian CNT dengan pencucian reflux lebih efektif dibandingkan dengan pencucian biasa dengan ditandai banyaknya prosentase atom C pada kurva a lebih tinggi dari kurva b (gambar 2) dan sebaliknya banyaknya prosentase atom Fe pada kurva a lebih rendah dari kurva b (gambar 3).



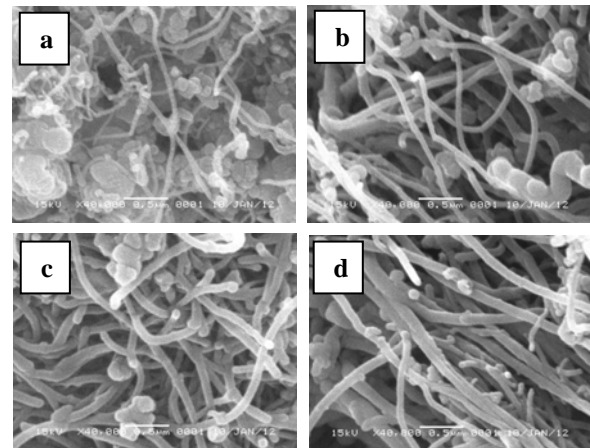
**Gambar 3.** Grafik hasil karakterisasi EDX terkait prosentase atom Fe pada sampel CNT yang dicuci dengan (a) metode reflux dan (b) metode biasa.

Gambar 4 dan 5 menunjukkan citra SEM material CNT sebelum dan sesudah pemurnian masing-masing dengan metode pencucian biasa dan reflux.



**Gambar 4.** Citra SEM material CNT yang dimurnikan dengan metode pencucian biasa menggunakan larutan HNO<sub>3</sub>: a) tanpa, b) 25%, c) 45% dan d) 65%.

Pada gambar 4a dan 5a (sebelum dicuci) menunjukkan sebagian besar morfologi material berbentuk gumpalan tidak berpola (amorf). Gumpalan-gumpalan tersebut bukan merupakan CNT, melainkan material lain yang merupakan produk samping atau zat sisa dari proses sintesis CNT yaitu karbon amorf. Sedangkan logam Fe biasanya terdapat pada ujung dari tabung karbon. Hal ini menunjukkan bahwa pada material CNT yang tidak dimurnikan masih terdapat banyak pengotor terutama karbon amorf dan Fe yang berasal dari ferrocene.



**Gambar 5.** Citra SEM material CNT yang dimurnikan dengan metode pencucian reflux menggunakan larutan HNO<sub>3</sub>: a) tanpa, b) 25%, c) 45% dan d) 65%.

Selanjutnya pada CNT yang sudah dimurnikan, maka bentuk morfologinya tampak terlihat berupa tabung berukuran nanometer, lebih teratur dan seragam terutama yang menggunakan pencucian dengan konsentrasi HNO<sub>3</sub> 65% khususnya dengan metode reflux. Semakin tinggi konsentrasi larutan HNO<sub>3</sub> yang digunakan dalam proses pemurnian mengakibatkan semakin berkurangnya karbon amorf yang terbentuk seperti yang ditunjukkan pada morfologi hasil karakterisasi SEM dan semakin berkurangnya logam Fe seperti yang ditunjukkan pada data hasil karakterisasi EDX. Sebagaimana dilaporkan oleh Herera, bahwa pemurnian CNT menggunakan asam dapat mengurangi Fe yang menempel pada ujung permukaan CNT. Selain itu, pemurnian dengan asam juga mampu mengurangi karbon amorf yang tidak berbentuk tabung nano [6].

#### IV. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian ini dapat diambil kesimpulan bahwa pemurnian menggunakan metode reflux dengan konsentrasi HNO<sub>3</sub> sebesar 65% menghasilkan material CNT yang relatif lebih murni dan morfologi tabung nano yang lebih teratur.

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Terimakasih kepada Kementerian Riset dan Teknologi dengan pendanaannya melalui Program Insentif Riset SINas tahun 2013.

#### PUSTAKA

- [1] N. Shankar, Min-Feng Yu, Vanka, S.P., Glumac, N.G., Synthesis of Tungstenoxide (WO<sub>3</sub>) Nanorods Using Carbon Nanotubes as Templates by Hot Filament Chemical Vapor Deposition, *Materials Letters* 60, 2006, pp. 771-774.
- [2] C. Journet, Maser W.K., Bernier P., Loiseau A., Delachapelle M.L., Lefrant S., Deniard P., Lee R., Fischer J.E., Large-Scale Production of Single-Walled Carbon Nanotubes by The Electric-Arc Technique, *Nature*, vol. 388, Issue 6644, 1997, pp. 756-758.

- 
- [3] A. Subagio, Pardoyo, Ngurah, A.K., Gunawan, V., Sony, Rowi, K., Studi Temperatur Penumbuhan Carbon Nanotubes (CNT) yang Ditumbuhkan Dengan Metode Spray Pyrolysis, *Jurnal Nanosains & Nanoteknologi*: vol. 2, no. 1, 2009, pp. 13-15.
- [4] V. Datsyuk, M. Kalyvaa, K. Papagelis, J. Partheniosa, D. Tasisb, A. Siokoua, I. Kallitsisa, C. Galiotis, Chemical Oxidation of Multiwalled Carbon Nanotubes, *Carbon* 46: 2008, pp 833–840.
- [5] K. MacKenzie, O. Dunens, A.T. Harris, A Review of Carbon Nanotube Purification by Microwave Assisted Acid Digestion, *Separation and Purification Technology* 66, 2009, pp 209–222.
- [6] J.E. Herrera, D.E. Resasco, In situ TPO/ Raman to Characterize Single-Walled Carbon Nanotubes, *Chemical Physics Letters* 376, 2003, pp 302–309.