

EFFECT OF RESIDENCE TIME OF GRAPHITISATION ON THERMAL CONDUCTIVITY OF MOLDED GRAPHITE

Pengaruh Waktu Tinggal Grafitisasi Terhadap Daya Hantar Panas Grafit

PEDY ARTSANTI, YATEMAN ARRYANTO

Chemistry Dept., Fac. of Mathematics and Natural Sciences Gadjah Mada University

KUSNANTO

Department of Nuclear Engineering Gadjah Mada University

ABSTRACT

The effect of residence time of graphitisation on thermal conductivity of molded graphite has been examined. The examination has been conducted by varying residence time of graphitisation of molded carbon with petroleum coke as raw material and coal tar pitch. Graphitisation has been conducted by heating molded graphite at 2500 °C in argon atmosphere with residence time of 10, 30 and 90 minutes. Graphitisation degree, density, shrinking mass and porosity of molded graphite were examined and so was its thermal conductivity. The result showed that the decrease of porosity and the increase of graphitisation degree due to the increasing of residence time of graphitisation will increase the thermal conductivity of graphite. Molded graphite graphitized with residence time for 90 minutes residence time gave thermal conductivity of 2.134 Watt/mK and graphitisation degree 0.718.

PENDAHULUAN

Latar Belakang

Bahan baku yang biasa digunakan untuk membuat grafit dalam industri adalah kokas minyak bumi dan gela ter batu bara [5,11,13,18]. Kokas minyak bumi digunakan sebagai bahan pengisi sedangkan gela ter batubara digunakan sebagai bahan pengikat. Kedua bahan tersebut merupakan hasil samping industri dengan kelimpahan yang relatif besar di Indonesia.

Pemanasan pada suhu tinggi, hingga mencapai 3000 °C akan menyebabkan karbon yang mempunyai struktur tidak teratur berkembang ke arah grafit yang strukturnya lebih teratur dengan melepaskan material pengotor volatil [14].

Salah satu parameter penting yang dapat menggambarkan kualitas grafit adalah daya hantar panas. Untuk itu, penelitian ini mengkaji pengaruh waktu tinggal grafitisasi terhadap daya hantar panas grafit.

Grafitisasi adalah pemberian panas pada bahan cetakan yang telah mengalami karbonisasi dimana material yang tidak dikehendaki seperti hidrogen, sulfur dan elemen lain yang masih tertinggal secara perlahan-lahan akan terusir keluar. Pada proses ini terjadi perubahan struktur dari struktur turbostratik menjadi struktur dengan tingkat keteraturan yang lebih baik, yaitu struktur kristal grafit. Perlakuan panas

grafitisasi lebih sering dilakukan pada suhu tidak kurang dari 2500 °C [11]. Pada umumnya, pembuatan grafit dilakukan dengan pemanasan senyawa-senyawa karbon aromatis pada suhu tinggi hingga 3000 °C [18]. Dalam industri yang disebut karbon adalah cuplikan karbon yang telah dipanaskan pada suhu 1000-1300 °C sedangkan grafit adalah cuplikan karbon yang telah dipanaskan pada suhu 2500 °C ke atas [16].

Daya hantar panas sebagai salah satu parameter kualitas grafit telah banyak dikaji. Smith dan Rasor dalam Kelly (1981) telah melakukan pengukuran daya hantar panas sejumlah grafit alam Canada pada arah paralel terhadap bidang dasar (sumbu ab) pada suhu antara 5-300 K. Hasil maksimum yang didapat adalah 2800 Wm⁻¹K⁻¹ pada daerah sekitar 80 K. Hooker *et al.* Dalam Reynolds (1986) telah melakukan pengukuran daya hantar panas grafit pada arah normal (sumbu c). pengukuran dilakukan pada suhu 90-340 K. daya hantar panas terbesar hasil pengukuran tersebut adalah 8,33 Watt/mK yang diperoleh pada suhu sekitar 340 K.

Struktur Grafit

Atom karbon netral memiliki 6 elektron dengan konfigurasi elektron terluar 2s¹ 2p_x¹ 2p_y¹ 2p_z¹. Hal ini menunjukkan bahwa setiap atom karbon memiliki empat orbital yang dapat membentuk ikatan kovalen dengan

atom lainnya. Pada grafit, tiga orbital membentuk tiga orbital hibrida sp^2 dan digunakan untuk membentuk ikatan kovalen. Sementara itu satu orbital p membentuk ikatan π dengan orbital p atom lain pada bidang dasar. Keberadaan ikatan π inilah yang menyebabkan grafit dapat menghantar listrik dan panas dengan baik pada arah bidang dasar karena elektron-elektronnya terdelokalisasi. Dengan mudah, elektron-elektron tersebut bebas bergerak dari satu sisi ke sisi lain pada lapisan bidang dasar tetapi tidak bergerak dari suatu lapisan ke lapisan lain [11].

Pola tumpukan bidang dasar grafit ada dua jenis, yaitu yang pertama pola tumpukan -ABCABCABC- yang dikenal sebagai struktur rhombohedral sedangkan yang kedua adalah pola tumpukan -ABABAB- yang dikenal sebagai struktur heksagonal.

Proses Pembuatan Grafit

Pada prinsipnya grafit ini dihasilkan melalui pemanasan senyawa-senyawa karbon aromatis pada suhu tinggi. Selama proses pemanasan, semua material yang bukan karbon harus dikeluarkan untuk mendapatkan karbon yang lebih murni sekaligus menata strukturnya. Proses pemanasan dalam pembuatan grafit dilakukan secara bertahap. Tahap pertama dikenal sebagai karbonisasi, yaitu mengkarbonkan cuplikan karbon untuk memperoleh kokas. Tahap kedua dikenal sebagai grafitisasi yaitu mengubah kokas menjadi grafit sehingga karbon dengan struktur tidak teratur cenderung berkembang ke arah grafit yang strukturnya teratur.

Porositas Grafit

Grafit mempunyai pori yang beragam. Pori tersebut sebagian besar terbentuk oleh beberapa kondisi selama proses pembuatannya. Beberapa tipe porositas grafit disebabkan oleh (Kelly, 1981):

1. tekanan gas pada saat perlakuan panas.
2. porositas yang memang sudah terbentuk dalam kokas yang digunakan.
3. tekanan yang terjadi sebagai akibat perbedaan muai panas kristal penyusunannya pada proses pendinginan dari temperatur tertinggi perlakuan panas (grafitisasi). Hal ini mengakibatkan terjadinya rekahan bidang dasar membentuk celah seperti pori. Arah perekahan kristal biasanya sejajar dengan bidang dasar.

Porositas grafit sangat mempengaruhi sifat-sifat yang lain seperti densitas, ketahanan terhadap korosi, kekuatan mekanik, daya hantar panas dan sebagainya. Densitas yang tinggi dari suatu grafit menunjukkan bahwa grafit tersebut memiliki porositas yang kecil. Porositas grafit didefinisikan sebagai perbandingan antara volume pori-pori grafit terhadap volume ruahnya.

Difraksi Sinar-x Grafit

Analisis cuplikan dengan metode difraksi sinar-x didasarkan atas terdapatnya kristal dalam cuplikan tersebut. Suatu kristal memiliki bidang yang dibentuk oleh atom-atom yang tertata secara teratur. Bidang-bidang tersebut akan menghamburkan sinar-x yang mengenainya. Difraksi sinar-x yang terjadi oleh suatu bidang kristal tertentu ditandai dengan sudut difraksi yang khas. Setiap senyawa atau unsur dengan struktur kristal tertentu akan memiliki pola difraksi tertentu juga. Oleh karena itu, struktur suatu zat dapat diperkirakan berdasarkan pola difraksinya.

Besarnya derajat grafitisasi (g) dari suatu cuplikan dapat diperkirakan berdasarkan harga d_{002} menurut persamaan berikut [15]:

$$g = \frac{3,440 - d_{002}}{3,440 - 3,354} \dots\dots\dots (1)$$

dimana,

g = derajat grafitisasi cuplikan

d_{002} = harga di puncak 002 cuplikan (Å)

Daya Hantar Panas

Dalam materi yang bersifat penghantar, panas dapat ditransmisikan oleh elemen-elemen bebas, yaitu elektron dan fonon. Sedangkan dalam penyekat, hampir semua panas ditransmisikan oleh fonon, bila tidak terdapat elektron yang bergerak bebas dalam materi tersebut [10]. Mengacu pada uraian tersebut, maka grafit dapat bersifat sebagai penghantar pada arah bidang dasar (sumbu ab) dan lebih bersifat sebagai penyekat pada arah normal (sumbu c).

Bertolak dari hasil pengamatan tersebut maka perpindahan panas dapat dikuantitaskan melalui perhitungan dengan persamaan dasar yang tepat. Untuk menghitung besarnya daya hantar panas, digunakan persamaan dasar yang lebih dikenal sebagai hukum Fourier [3]:

$$q_x = -k \frac{dT}{dx} \dots\dots\dots (2)$$

dimana,

q_x = aliran panas pada arah x per satuan luas (Watt/m²)

k = daya hantar panas (Watt/mK)

$\frac{dT}{dx}$ = gradien temperatur (m/K)

CARA PENELITIAN

Bahan Penelitian

Bahan baku yang digunakan dalam penelitian ini adalah kokas minyak bumi produksi Pertamina UP II Dumai Riau sebagai pengisi dan gala ter batubara dari PT INALUM Jakarta sebagai pengikat. Untuk menciptakan kondisi inert pada grafitisasi digunakan gas argon sebagai atmosfer.

Alat Penelitian

Kalsinasi dilakukan menggunakan tungku pemanas lisrik tipe *Automatic Muffle Furnace OSK-OMWS-2* dengan suhu maksimum 1300 °C. bahan baku kokas terkalsinasi dihaluskan dengan *ball mill*, dan dilakukan pengayakan dengan ukuran diameter lubang ayakan 63 µm (250 mesh). Penumbukan dan pengayakan juga dilakukan terhadap gala ter batubara dengan ukuran diameter lubang ayakan 125 µm. Untuk membuat karbon cetakan digunakan penekan hidrolik satu arah gaya dan cetakan *stainless steel*. Grafitisasi dilakukan menggunakan tungku listrik *High Temperature High Vacum Furnace Model 121212G* dengan kemampuan mencapai suhu maksimum 3000 °C. daya hantar panas grafit diukur dengan *Heat Conduction Apparatus Armfield*. Untuk mengamati spektra grafit digunakan alat *X-ray Diffractometer type PW3710 BASED* dengan *PC-APD Diffraction Software*. Porositas dan kenampakan permukaan grafit diamati dengan mikroskop cahaya *Olympus Research Microscope (Vanox-T)* model AHMT.

Cara Penelitian

Proses kalsinasi

Kalsinasi dilakukan dengan metode baru (Kakuta, 1981). Kokas dikalsinasi dalam kondisi inert melalui dua tahap yaitu kalsinasi pada suhu 900 °C kemudian dilakukan kalsinasi ulang pada suhu 1300 °C.

Proses pencetakan dan karbonisasi

Kokas yang telah dikalsinasi ditumbuk dan diayak dengan ukuran diameter lubang ayakan 63 µm (250 mesh) sedangkan gala ter batubara dihancurkan dan diayak dengan ukuran diameter lubang ayakan 125 µm. kemudian dilakukan pencampuran antara kokas terkalsinasi dan gala ter batu bara dimana untuk setiap cuplikan disiapkan 49 gram kokas terkalsinasi dan 21 gram gala ter batubara. Langkah selanjutnya, campuran homogen kokas terkalsinasi dan gala ter batubara tersebut dipanaskan sampai membentuk pasta akibat pelelehan gala ter batubara. Kemudian pasta yang terbentuk dicetak menggunakan penekan hidrolik satu arah gaya dan cetakan *stainless steel*. Setelah itu dilakukan karbonisasi dalam kondisi inert pada suhu 1000 °C selama satu jam.

Proses grafitisasi

Karbon cetakan yang telah mengalami karbonisasi digrafitisasi pada suhu 2500 °C dengan laju pemanasan 6 °C/menit. Waktu residensi grafitisasi divariasi 10, 30 dan 90 menit. Kemudian grafit yang dihasilkan dari proses grafitisasi (grafit) dianalisis dengan difraktometer sinar-x, mikroskop optis cahaya dan diukur daya hantar panasnya dengan *heat conduction apparatus*.

Uji daya hantar panas

Daya hantar panas grafit pada penelitian ini diukur pada suhu sekitar 340-380 K. nilai daya hantar panas grafit diukur dengan menggunakan alat pengukur daya hantar panas *Armfield* yang bekerja berdasarkan Hukum Fourier.

Rumus:

$$\begin{aligned} \frac{Q}{A} &= K_h \frac{T_h - T_{h1}}{X_h} \dots\dots\dots (3) \\ &= K_s \frac{T_{h1} - T_{c1}}{X_s} \\ &= K_s \frac{T_{c1} - T_c}{X_c} \end{aligned}$$

dengan,

Q = daya pada alat

A = luas penampang batang pemanas

K_h = nilai daya hantar panas batang pemanas

X_h = panjang batang pemanas

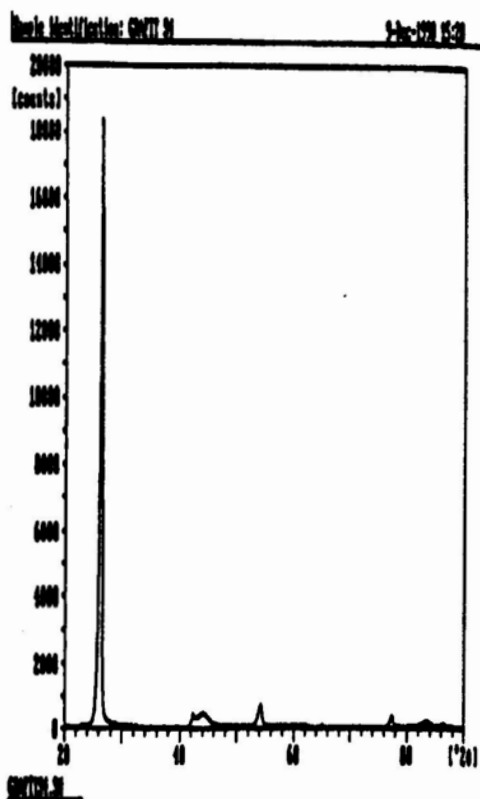
K_s = nilai daya hantar panas cuplikan

X_s = panjang cuplikan
 K_c = nilai daya hantar panas batanag pendingin
 X_c = panjang batang pendingin

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Konversi Kokas Minyak Bumi menjadi Grafit

Grafitisasi merupakan tahap akhir yang harus dilakukan dalam pembuatan grafit. Pembuktian kebenaran dari hasil sintesis dilakukan dengan cara melakukan uji difraksi sinar-x terhadap grafit. Difraktogram grafit yang dihasilkan dibandingkan dengan data difraktogram grafit yang terdapat dalam JCPDS no. 23-64. Difraktogram grafit disajikan dalam Gambar 1.



Gambar 1. Difraktogram grafit

Tiga puncak tertinggi dari difraktogram grafit (Gambar 1), yaitu puncak 002, 101 dan 004 secara berurutan muncul pada sudut difraksi (2θ) sebesar $26,355^\circ$; $44,485^\circ$ dan $54,285^\circ$. sudut difraksi tersebut bersesuaian dengan harga $d(\text{Å})$ masing-masing sebesar $3,3789$; $2,0349$ dan $1,6885$. Harga $d(\text{Å})$ dari grafit ini bersesuaian dengan puncak 002, 101

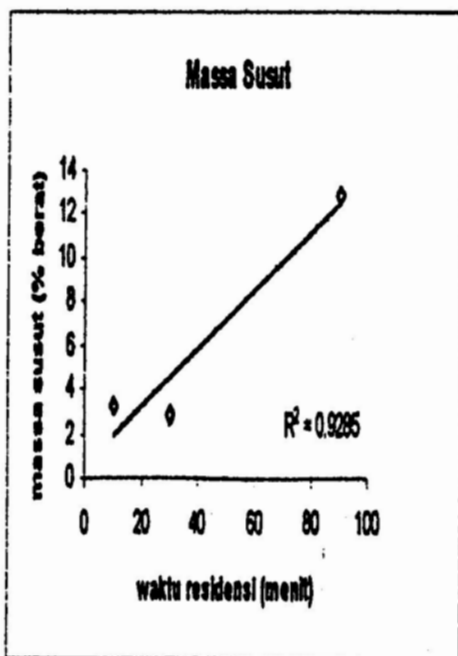
dan 004 dari data difraktogram grafit yang terdapat dalam JCPDS no. 23-64. Puncak-puncak tersebut mempunyai harga $d(\text{Å})$ masing-masing sebesar $3,36$; $2,03$ dan $1,678$. Dari uraian ini jelas bahwa semua puncak yang khas dari difraktogram grafit yang terdapat dalam JCPDS no. 23-64 terdapat juga pada difraktogram grafit. Hal ini membuktikan bahwa hasil sintesis bahan karbon adalah grafit.

Pengaruh Waktu Residensi Grafitisasi terhadap Karakteristik Makroskopis Grafit

Penambahan waktu residensi grafitisasi merupakan penambahan energi bagi bahan karbon untuk melepas material-material pengotor serta menata struktur bahan karbon struktur tersebut menjadi bahan karbon berstruktur grafit. Guna mengetahui seberapa jauh perubahan struktur dan prosentase material pengotor yang dilepas, maka dikaji kemungkinan perubahan massa susut dan densitas grafit sebagai akibat penambahan waktu residensi grafitisasi.

Penyusutan massa bahan karbon yang terjadi akibat grafitisasi ditentukan dengan cara menimbang massa bahan karbon sebelum dan sesudah grafitisasi. Hubungan antara waktu residensi grafitisasi dan prosentase massa susut grafit disajikan pada Gambar 2.

Gambar 2 menunjukkan bahwa ada kecenderungan makin besar massa susut grafit sejalan dengan peningkatan waktu residensi grafitisasi. Grafit dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit mengalami perubahan massa susut yang cukup besar dibanding dengan grafit dengan waktu residensi grafitisasi 10 dan 30 menit. Perubahan massa susut yang cukup besar ini terjadi karena energi yang diberikan pada proses tersebut cukup besar untuk melepaskan material-material pengotor dalam jumlah yang relatif besar.



Gambar 2. Grafik massa susut

Perubahan massa susut grafit pada grafitisasi ini berhubungan erat dengan pembebasan hidrogen dan heteroatom S dan N dalam bentuk gas [19] serta spesies kimia berupa interstisial karbon [11]. Pembebasan belerang dan senyawa organik lain selama pemanasan akan meningkatkan volume pori cuplikan dan menimbulkan hembusan. Proses ini berlangsung pada suhu 1540 °C ke atas [18].

Penyusutan massa sangat mungkin diikuti perubahan volume grafit. Untuk itu perlu dikaji perubahan massa dan volume dengan parameter yang tepat untuk menggambarkannya yaitu densitas. Penyusutan massa yang semakin besar dengan semakin lamanya waktu residensi grafitisasi akan berpengaruh terhadap kepadatan material. Pengaruh waktu residensi grafitisasi terhadap perubahan densitas ruah grafit dilakukan dengan mengamati densitas ruah grafit tersebut setelah waktu residensi grafitisasi tertentu. Densitas ditentukan dengan membandingkan massa grafit terhadap volume ruahnya. Data hubungan antara waktu residensi grafitisasi dengan densitas ruah grafit disajikan dalam Tabel 1.

Tabel 1. Tabel densitas ruah

No.	Waktu residensi (menit)	Densitas ruah (gr/ml)
1.	10	1,362 ± 0,048
2.	30	1,486 ± 0,030
3.	90	1,358 ± 0,059

Densitas grafit secara teori akan meningkat dengan bertambahnya waktu residensi grafitisasi. Hal ini disebabkan oleh proses penataan struktur bahan karbon yang semakin teratur. Dalam penelitian ini, peningkatan densitas grafit tidak teramati dengan baik. Tampak dalam Tabel 1 bahwa densitas grafit relatif tidak berubah dengan penambahan waktu residensi grafitisasi. Fenomena ini menunjukkan bahwa proses penataan struktur oleh energi yang ditambahkan sebagai akibat penambahan waktu residensi grafitisasi tidak teramati dengan perubahan densitas ruah grafit.

Rendahnya densitas ruah yang ditunjukkan Tabel 1 kemungkinan menandakan masih banyaknya rongga pori dan retak pada grafit. Adanya rongga pori menyebabkan volume grafit sangat besar. Untuk itu dibutuhkan pengamatan terhadap tekstur permukaan dengan mikroskop optis untuk memastikan porositas grafit yang dihasilkan. Tekstur optis permukaan grafit dapat digunakan untuk mengamati porositas serta kontak antar partikel kokas dalam bentuk jaringan karbon. Hal ini akan dibahas pada bagian selanjutnya.

Pengamatan perubahan massa susut dalam penelitian ini memberikan informasi yang akurat bahwa energi yang ditambahkan saat grafitisasi dengan meningkatkan waktu residensi grafitisasi, sebagian digunakan untuk melepaskan material pengotor grafit. Proses penataan struktur dalam penelitian ini tidak teramati dengan baik oleh perubahan densitas grafit sebagai akibat penambahan waktu residensi grafitisasi. Untuk itu perlu dikaji pengaruh waktu residensi grafitisasi terhadap karakteristik mikroskopi yang meliputi tekstur permukaan dan derajat grafitisasi grafit.

Pengaruh Waktu Residensi Grafitisasi terhadap Karakteristik Mikroskopi Grafit

Pada bagian ini, pembahasan dititikberatkan pada analisis data difraktogram grafit. Data difraktogram grafit disajikan dalam Tabel 2.

Dalam Tabel 2 tampak bahwa grafitisasi dengan waktu residensi selama 10 menit mempunyai puncak 002, 101, 004 dan 100 yang muncul pada daerah $2\theta = 26,260^\circ$; $44,240^\circ$; $54,145^\circ$ dan $77,385^\circ$ dengan harga $d(\text{\AA})$ masing-masing adalah 3,3909; 2,0456; 1,6925 dan 1,2322. Untuk waktu residensi 30 menit, puncak-puncak tersebut muncul pada daerah $2\theta = 26,325^\circ$; $44,655^\circ$; $54,085^\circ$ dan $77,370^\circ$ dengan harga $d(\text{\AA})$ masing-masing adalah 3,3827; 2,0276; 1,6942 dan 1,2324. Untuk grafit dengan waktu residensi selama 90 menit, puncak-puncak yang sama yaitu 002, 101, 004 dan 110 muncul pada daerah $2\theta = 26,355^\circ$; $44,485^\circ$; $54,285^\circ$ dan $77,375^\circ$ dengan harga $d(\text{\AA})$ masing-masing adalah

3,3789; 2,0349; 1,6885 dan 1,2323. Uraian ini menunjukkan bahwa puncak-puncak yang khas dari difraktogram grafit mempunyai harga $d(\text{\AA})$ yang mirip dengan harga $d(\text{\AA})$ dari data difraktogram grafit yang terdapat dalam JCPDS no. 23-64. Dengan demikian ketiga hasil sintesis tersebut adalah grafit.

Struktur grafit dalam penelitian ini adalah struktur grafit heksagonal. Hal ini dapat diketahui dari puncak-puncak 002, 004 dan 006 yang muncul pada difraktogram grafit yang dihasilkan. Puncak-puncak tersebut adalah puncak yang khas untuk struktur grafit heksagonal. Analisis yang sama juga telah dilakukan Gay dan Gasparoux dalam Reynolds (1968).

Tabel 2. Data difraktogram grafit

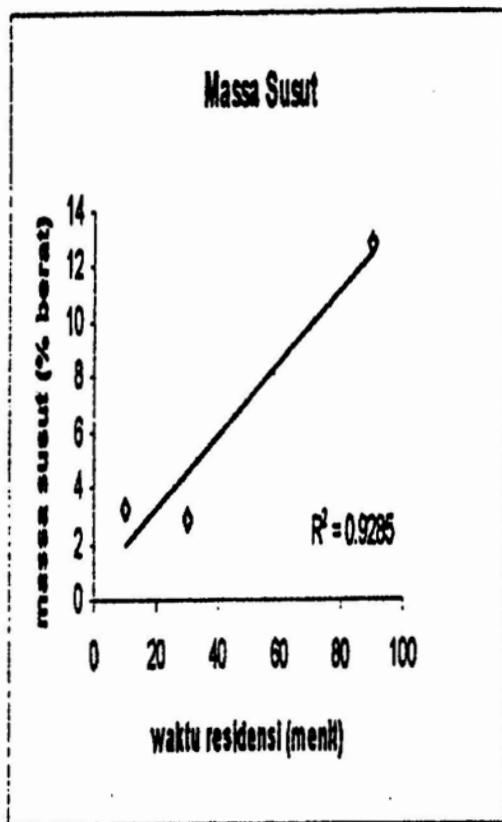
hKI	Waktu residensi					
	$d(\text{\AA})$			Intensitas relatif		
	10'	30'	90'	10'	30'	90'
002	2,3909	3,3827	3,3789	100	100	100
101	2,0456	2,0276	2,0349	1,3	1,3	2,1
004	1,6925	1,6942	1,6885	3,3	3,9	3,8
110	1,2322	1,2324	1,2323	1,7	1,5	2,1
006	1,1284	1,1256	1,1263	0,3	0,4	0,4

Dari data yang disajikan dalam Tabel 2 terlihat bahwa dengan peningkatan waktu residensi grafitisasi dari 10 menit, kemudian 30 menit dan 90 menit dapat menurunkan jarak antara tiap satuan bidang pada kisi kristal dengan nilai d mendekati 3,354 Å. Hal ini dapat dijelaskan dengan proses difusi. Pada saat suhu naik, maka atom akan bergetar karena ada tambahan energi kinetik. Bila energi kinetik semakin besar, maka kekosongan-kekosongan atau *vacancies* yang sebelumnya sudah ada akan diisi oleh atom lain. Saat yang sama terjadi rotasi dan atau translasi paralel bidang untuk membentuk pola-pola tumpukan yang semakin teratur. Proses ini membutuhkan transformasi panas yang merata sehingga fenomena difusi atom untuk mencapai bentuk kristal yang diharapkan dapat dilakukan di seluruh bagian grafit. Proses penataan struktur dilakukan dengan eliminasi cacat antar bidang, cacat dalam bidang dasar dan eliminasi struktur yang salah tumpuk. Akibatnya, lama waktu residensi grafitisasi sangat menentukan proses difusi ini.

Menurut pendapat Marinkovic (1984), grafitisasi berlangsung dua tahap. Pada tahap pertama *d-spacing* berkurang dari 3,430 Å menjadi 3,370 Å dan pada tahap ini proses

penataan lapisan antar sel dalam struktur karbon akan dominan. Pada tahap kedua *d-spacing* akan berkurang menjadi 3,360 Å dimana akan terjadi peningkatan derajat kristalinitas grafit. Pada tabel 2 terlihat penurunan *d-spacing* hanya sampai 3,909 Å untuk waktu residensi 10 menit, 3,3827 Å untuk waktu residensi sekitar 30 menit dan 3,3789 Å untuk waktu residensi 90 menit. Dengan demikian pemanasan pada suhu 2500 °C pada penelitian ini hanya mampu menurunkan *d-spacing* sampai pada tahap pertama.

Grafit dengan waktu residensi sekitar 10 menit menghasilkan derajat grafitisasi sebesar 0,626 sedang untuk waktu residensi sekitar 90 menit mempunyai derajat grafitisasi yang dihitung berdasarkan persamaan (1) sebesar 0,718. Grafit hubungan derajat grafitisasi grafit dengan waktu residensi grafitisasi disajikan dalam Gambar 3.



Gambar 3. Grafik derajat grafitisasi

Dari uraian di atas dapat dikatakan bahwa pemanasan pada grafitisasi dengan waktu residensi 90 menit akan meningkatkan derajat grafitisasi sebesar 14,70 % dibanding dengan waktu residensi 10 menit. Pada penelitian ini, grafit dengan waktu residensi grafitisasi selama 90 menit mempunyai derajat grafitisasi yang jauh lebih tinggi dibanding grafit dengan waktu residensi grafitisasi 10 dan 30 menit. Hal ini menunjukkan bahwa energi yang diberikan saat grafitisasi dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit telah cukup untuk menata struktur grafit hingga diperoleh derajat grafitisasi yang cukup tinggi (0,718).

Berdasarkan fakta tersebut di atas, dapat disimpulkan bahwa penambahan energi dengan peningkatan waktu residensi grafitisasi akan meningkatkan kualitas struktur grafit. Hal ini teramati dengan baik dari peningkatan derajat grafitisasi grafit tersebut. Selanjutnya grafit dengan variasi waktu residensi grafitisasi akan diamati tekstur optis permukaannya untuk mengetahui porositas grafit tersebut. Porositas serta kontak antar partikel kokas dalam membentuk jaringan karbon dapat diamati dengan menggunakan foto permukaan grafit.

Pada penelitian ini kemungkinan telah terjadi pengelompokan-pengelompokan grafit dari bentuk lamelar menjadi serpihan-serpihan. Proses ini diiringi transformasi celah-celah parit dan pori berdiameter kecil bekas laluan sulfur menjadi rekahan-rekahan makropori yang semakin melebar sejalan dengan kenaikan waktu residensi grafitisasi. Hal ini terjadi kemungkinan karena keluarnya material pengotor dalam bentuk gas. Jika laju pembentukan gas lebih besar daripada laju penghilangannya maka gas akan terkumpul dalam pori grafit sehingga tekanannya menaik. Apabila tekanan gas lebih tinggi daripada kekuatan dinding pori grafit maka akan terjadi hembusan yang dapat memperbesar volume pori sehingga porositas grafit semakin tinggi [1]. Oleh karena itu pori dengan diameter kecil cenderung hilang, menyatu atau melebar membentuk makropori. Hal ini dikuatkan oleh pendapat Weishauptova,dkk (1992) yang menunjukkan terjadinya transformasi mikropori menjadi meso dan makropori saat pemanasan di atas 2350 °C.

Pengaruh Waktu Residensi Grafitisasi terhadap Daya Hantar Panas Grafit

Pada penelitian ini dilakukan pengukuran daya hantar panas pada grafit yang berbentuk silinder dengan diameter 2,5 cm dan panjang 3 cm. Grafit tersebut diberikan panas pada salah satu ujungnya dan pendingin pada ujung yang lain. Dengan adanya beda temperatur tersebut, maka daya hantar panas grafit dapat ditemukan dengan Hukum Fourier.

Pengukuran daya hantar panas grafit dalam penelitian ini dilakukan pada suhu 340-380 K. pada rentang suhu tersebut pengukuran dapat dilakukan dengan mudah dan teliti. Hal ini dilakukan agar nilai daya hantar panas grafit dapat terukur dengan baik.

Untuk mengkaji faktor-faktor yang berpengaruh pada daya hantar panas grafit, berikut ini disajikan data waktu residensi, densitas serta daya hantar panas grafit tersebut dalam Tabel 3.

Daya hantar panas grafit dalam penelitian ini relatif kecil. Hal ini terjadi kemungkinan karena faktor arah pengukuran. Pada arah tegak lurus bidang dasar (arah c), perpindahan panas secara konduksi disebabkan oleh fonon sehingga grafit lebih bersifat sebagai *insulator thermal* (penyekat panas) karena tidak terdapat elektron yang dapat bergerak bebas pada arah ini.

Sebaliknya, pada arah sejajar bidang dasar (arah ab), secara teoritis akan memberikan nilai daya hantar panas yang jauh lebih besar karena adanya elektron yang dapat bergerak bebas. Elektron ini memberikan kontribusi yang sangat besar dalam proses perpindahan panas secara konduksi. Hal ini sesuai dengan Pierson (1993) yang menyebutkan bahwa daya hantar panas grafit pada bidang dasar (arah ab) mempunyai nilai yang mendekati 200 kali lebih besar daripada daya hantar panas grafit tersebut pada arah normal, tegak lurus bidang dasar (arah c).

Rendahnya densitas grafit juga akan mempengaruhi nilai daya hantar panas yang diukur. Rendahnya densitas grafit ini menandakan masih banyaknya rongga pori dan retak dalam grafit tersebut. Semakin besar ukuran pori dan semakin banyaknya pori dalam grafit akan semakin menghambat aliran panas secara konduksi. Elektron dan fonon tidak mampu melewati pori, seolah-olah pori berfungsi sebagai penyekat.

Pada Tabel 3 nampak bahwa nilai daya hantar panas grafit dengan waktu residensi grafitisasi 10 dan 30 menit tidak jauh berbeda, sedangkan grafit dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit mempunyai daya hantar panas yang relatif lebih besar. Hal ini terjadi karena kemungkinan masih banyaknya pengotor dalam grafit dengan waktu residensi grafitisasi 10 dan 30 menit.

Dugaan adanya pengotor ini didukung oleh data tentang massa susut grafit (pada Gambar 2). Adanya pengotor tersebut, menurut Omar (1975) akan menghamburkan fonon karena penghancuran sebagian periodisitas pada perambatan bebas gelombang kisi. Dengan demikian maka intensitas fonon akan menurun. Oleh karena itu proses perpindahan panas secara konduksi atau lebih dikenal dengan daya hantar panas juga akan menunjukkan nilai yang lebih kecil.

Tabel 3. Waktu residensi, densitas dan daya hantar panas grafit

No	Waktu residensi (menit)	Densitas (gr/ml)	Daya hantar panas (Watt/mK)
1.	10	1,362 ± 0,048	2,022 ± 0,001
2.	30	1,486 ± 0,030	1,938 ± 0,078
3.	90	1,358 ± 0,059	2,134 ± 0,010

Tabel 4. Daya hantar panas grafit

No	Waktu residensi (menit)	Derajat grafitisasi	Daya hantar panas (Watt/mK)
1.	10	0,626 ± 0,055	2,022 ± 0,001
2.	30	0,630 ± 0,037	1,938 ± 0,078
3.	90	0,718 ± 0,008	2,134 ± 0,010

Harga absolut daya hantar panas grafit pada temperatur tertentu juga tergantung pada detail kristalnya. Hal ini dapat dilihat dari Tabel 4 yang menghubungkan waktu residensi dan derajat grafitisasi dengan daya hantar panas grafit.

Daya hantar panas grafit dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit mempunyai nilai yang relatif tinggi dibandingkan dengan grafit dengan nilai residensi grafitisasi 10 dan 30 menit. Hal ini sejalan dengan tingginya tingkat derajat grafitisasi grafit dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit. Pada kondisi tersebut, jarak antar lapisan (arah c) menjadi lebih pendek (sekitar 0,3378 nm) sehingga proses perpindahan panas secara konduksi menjadi lebih mudah. Dengan pertimbangan

yang sama, secara teori grafit dengan waktu residensi grafitisasi 30 dan 10 menit berturut-turut mempunyai daya hantar panas yang semakin kecil. Tetapi pada kenyataannya, seperti tampak pada Tabel 3 dan 4, tidak demikian. Daya hantar panas grafit dengan waktu residensi grafitisasi 30 menit lebih rendah daripada grafit dengan waktu residensi grafitisasi 10 menit. Fenomena ini dapat terjadi mungkin karena pengaruh tingkat anisotrop grafit yang cukup tinggi. Powell (1957) mengatakan bahwa daya hantar panas karbon dan grafit dapat dipengaruhi oleh berbagai variabel seperti densitas, ukuran kristal dan orientasi. Hal ini dikuatkan oleh Meers (1957) yang menyebutkan bahwa tingginya tingkat

anisotrop dalam grafit dengan adanya material pengikat (*binder material*) yang tidak diketahui orientasinya menyebabkan sulitnya dilakukan interpretasi detail dari daya hantar panas.

Untuk mendapatkan informasi yang lebih lengkap, daya hantar panas grafit sebaiknya diukur pada beberapa rentang suhu, yaitu suhu rendah dan pada suhu tinggi. Suhu rendah di sini sebaiknya sekitar 10 K, karena pada suhu tersebut tumbukan antara fonon dengan fonon maupun fonon dengan partikel penyebab cacat kristal menjadi tidak efektif. Hal ini terjadi karena fonon-fonon tersebut tereksitasi dengan panjang gelombang yang cukup besar, sehingga tidak dapat dihamburkan dengan efektif oleh partikel-partikel yang saling berinteraksi. Sedangkan pengukuran daya hantar panas grafit pada suhu tinggi dimaksudkan untuk melihat tingkat ketergantungan daya hantar panas grafit tersebut terhadap temperatur pengukurannya.

Dari pembahasan di atas dapat disimpulkan bahwa daya hantara panas grafit dipengaruhi oleh beberapa faktor sebagai akibat peningkatan waktu residensi grafitisasi. Besarnya massa susut dan menurunnya porositas yang disertai dengan peningkatan derajat grafitisasi akan meningkatkan daya hantar panas grafit.

KESIMPULAN

Bedasarkan hasil penelitian dan pembahasan yang telah diuraikan pada bagian sebelumnya dapat disimpulkan bahwa:

1. Penurunan porositas serta peningkatan derajat grafitisasi sebagai akibat penambahan waktu residensi grafitisasi akan meningkatkan daya hantar panas grafit.
2. Grafit dengan waktu residensi grafitisasi 90 menit mempunyai nilai daya hantar panas 2,134 Watt/mK dan derajat grafitisasi sebesar 0,718.

DAFTAR PUSTAKA

1. Gulo, S., 1997, *Pembuatan Grafit Impremeabel dari Kokas Minyak Bumi*, Tesis Magister Sains, Fakultas MIPA Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta
2. Heintz, E.A., 1996, Review The Characterization of Petroleum Coke, *Carbon*, 34: 699-709.
3. Incropera, F.P., and DeWitt, D.P., 1985, *Introduction to Heat Transfer*, John Wiley & Sons, New, York.
4. Kakuta, M., Tanaka, H., Sato, J., and Naguchi, H., 1981, A New Calcining Technology for Manufacturing to Coke with Lower Thermal Expansion Coefficient, *Carbon*, 19: 347-352.
5. Kelly, B.T., 1981, *Physics of Graphite*, Applied Science Publishers, London.
6. Mateos, J.M.J., Romeo, E., and Salazar, C.G.D., 1993, XRD Study of Petroleum Cokes by Line Profile Analysis: Relation Among Heat Treatment, Structure and Sulphur Content, *Carbon*, 31: 1159-1178.
7. Marinkovic, S., 1984, *Subtitutional Solid Solubility in Carbon and Graphite*, in *Chemistry and Physics of Carbon*, Ed Thower, A.P., Marcel Dekker, Inc., New York, volume 19,1
8. Meers, J.T., Bowman, J.C., and Krumhansl, J.A., 1957, *Industrial Carbon and Graphite*, X-Ray and Low Temperature Thermal Conductivity Study of Defects in Graphite, Papers read at the Conference, Society of Chemical Industri, London.
9. Omar, M.A., 1975, *Elementary Solid State Physics: Principles and Applications*, Addison-Wesley Publishing Company Reading, Massachusetts.
10. Pierson, H.O., 1993, *Handbook of Carbon, Graphite, Diamond and Fullerenes, Properties, Processing and Applications*, Noyes Publications, New Jersey.
11. Powell R.W., 1957, *Industrial Carbon and Graphite*, The Thermal Conductivities of Carbons and Graphites at High Temperatures, Papers reads at the Conference, Society of Chemical Industri. London.
12. Reynolds, W.N., 1968, *Physical Properties of Graphite*, Elsevier Publishing Co., Ltd, Amsterdam.
13. Saadaoui, H., Roux, J.C., Flandrois, S., and Nysten, B., 1993, Graphitization of Pyrocarbons: An STM Study, *Carbon*, 34: 481-486.
14. Seera, M.S., and Pavlovicx, A.S., 1993, X-ray Diffraction, Thermal Expansion, Electrical Conductivity, and optical Microscopy Studies on Coal-Based Graphites, *carbon*, 31: 557-564.
15. Shreve, R.N., and Brink, J.A., 1977, *Chemical Process Industries*, McGraw Hill Inc., Tokyo.
16. Sogabe, T., Inagaki, M., and Ibuki, T., 1992, Coating of Graphite by Polyimide and Its Gas Permeability, *carbon*, 30: 513-516.

17. Weishauptova, Z., Medek, J., and Vaverkova, Z., 1992, A Change in The Porous Structure of Coke between 1540°C and 2880°C, *Carbon*, 30: 1055-1062.