

Kesan Kadar Aliran Nitrogen Teknik RF-PECVD terhadap Morfologi, Sifat Kimia dan Prestasi Penjerapan CO₂ Komposit ZSM-5/a-CN_x

(Effect of Nitrogen Flow Rate of RF-PECVD Technique on Morphology, Chemical Properties and CO₂ Adsorption Performance of ZSM-5/a-CN_x Composites)

ANIN SOFYA MOHD AKHIRI¹, NURUL IMANINA MOHD AZLAN¹, ZALITA ZAINUDDIN¹, TEH LEE PENG² & ROZIDAWATI AWANG^{1,*}

¹*Jabatan Fizik Gunaan, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

²*Jabatan Sains Kimia, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

Diserahkan: 30 September 2025/Diterima: 18 Januari 2026

ABSTRAK

Penyelidikan ini dijalankan untuk mengkaji kesan kadar aliran gas nitrogen terhadap morfologi, sifat kimia dan prestasi penjerapan CO₂ komposit ZSM-5/a-CN_x. Kepingan ZSM-5 disediakan melalui teknik tekanan sepaksi, seterusnya filem nipis a-CN_x dimendapkan di atasnya dengan ubahan nisbah kadar aliran gas CH₄:N₂ pada 50:30, 50:40, 50:50 dan 50:60 sccm untuk menghasilkan sampel komposit ZSM-5/a-CN_x. Mikrograf FESEM menunjukkan ciri morfologi ZSM-5 yang berbucu tajam dan berongga masih terpelihara selepas proses pemadatan, manakala permukaan komposit berubah kepada tekstur yang lebih homogen akibat pemendapan filem nipis a-CN_x. Analisis data BET memperlihatkan penurunan luas permukaan khusus dan isi padu liang bersaiz mikro akibat penutupan sebahagian liang akibat proses pemendapan filem nipis a-CN_x. Namun begitu, isi padu liang kumulatif kekal hampir tidak berubah dan menandakan pemendapan filem nipis berjaya mengekalkan sebahagian besar struktur liang ZSM-5. Analisis data FTIR mengesahkan penghasilan komposit ZSM-5/a-CN_x melalui kehadiran ikatan C-H, C=C, C=N dan C-N. Analisis data TPD pula menunjukkan kapasiti penjerapan CO₂ tertinggi (212.04 cm³/g) oleh sampel komposit ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran N₂ 30 sccm, iaitu peningkatan sebanyak 12.46% berbanding ZSM-5 asli. Keputusan kajian ini mendapati bahawa jenis dan konfigurasi kumpulan berfungsi nitrogen memainkan peranan yang lebih penting berbanding jumlah kandungan nitrogen secara keseluruhan. Dalam kajian ini, kumpulan berfungsi C=N didapati berupaya menyediakan tapak bes yang kuat bagi meningkatkan prestasi penjerapan CO₂ secara kimia, sekali gus menekankan potensi komposit ZSM-5/a-CN_x dalam pembangunan bahan penjerap karbon yang lebih cekap.

Kata kunci: BET; FTIR; TPD; penangkapan karbon

ABSTRACT

This study was conducted to investigate the effect of nitrogen flow rate on the morphology, chemical properties, and CO₂ adsorption performance of ZSM-5/a-CN_x composites. ZSM-5 pellets were prepared using a uniaxial pressing technique, followed by deposition of a-CN_x thin film by varying the CH₄:N₂ gas flow ratio at 50:30, 50:40, 50:50, and 50:60 sccm to produce the ZSM-5/a-CN_x composite samples. FESEM micrographs showed that the sharp-edged and porous morphological features of ZSM-5 were preserved after compaction, while the composite surfaces became more homogeneous due to the a-CN_x thin-film deposition. BET analysis showed a decrease in specific surface area and micropore volume due to partial pore closure from the deposition of a-CN_x thin film. However, the cumulative pore volume remained slightly unchanged indicating that the thin film deposition successfully preserved most of the porous framework of ZSM-5. FTIR data confirmed the successful deposition of a-CN_x thin film through the presence of C-H, C=C, C=N, and C-N bonds. TPD data demonstrated the highest CO₂ adsorption capacity (212.04 cm³/g) was achieved by the sample prepared at the lowest nitrogen flow rate (30 sccm), representing a 12.46% increase compared to pristine ZSM-5. Our findings found that the type and configuration of nitrogen functional groups play a more critical role than total nitrogen content in determining surface basicity. In this study, the C=N functionality was found to be able to provide strong basic sites to enhance CO₂ chemisorption performance, thus emphasizing the potential of the ZSM-5/a-CN_x composite in the development of more efficient CO₂ adsorbents.

Keywords: BET; FTIR; TPD; carbon capture

PENGENALAN

Sejak beberapa tahun kebelakangan ini, peningkatan pelepasan gas karbon dioksida CO_2 menjadi isu yang semakin besar di Malaysia. Pelepasan gas ini disumbangkan oleh pembakaran bahan api fosil untuk penjana tenaga demi menyokong pembangunan perbandaran dan pertumbuhan ekonomi negara. Sehingga kini, pelbagai inisiatif telah diambil untuk menangani isu pelepasan gas CO_2 oleh aktiviti pembakaran bahan api fosil termasuk penggubalan dasar dan akta tenaga serta pembangunan teknologi tenaga boleh diperbaharui seperti kuasa hidro, solar, geoterma dan biotenaga (Fernandez et al. 2024). Walau bagaimanapun, terdapat pelbagai cabaran yang perlu ditangani untuk membolehkan peralihan kepada tenaga boleh diperbaharui seperti tahap kematangan teknologi dan kos pembangunan yang tinggi. Tenaga boleh diperbaharui juga belum mampu memberi jaminan bekalan elektrik yang mencukupi sebagaimana yang disediakan oleh tenaga berasaskan bahan api fosil. Oleh itu, selaras dengan komitmen kerajaan dalam Perjanjian Paris pada tahun 2016, Rancangan Malaysia Kedua Belas (RMK-12) telah memulakan pelaksanaan teknologi penangkapan dan penyimpanan karbon (CCUS) sebagai strategi untuk mengurangkan pelepasan gas rumah hijau daripada loji tenaga berasaskan bahan api fosil.

Dalam keseluruhan rantai operasi CCUS, proses penangkapan karbon konvensional menggunakan larutan amina seperti monoetanolamina (MEA) merupakan proses termahal iaitu sekitar 70-80% (Sukor et al. 2020). Oleh itu, usaha mengurangkan kos penangkapan CO_2 telah mendorong penyelidik untuk membangunkan alternatif kepada larutan amina seperti membran polimer pemisah gas dan bahan penyerap pepejal. Walaupun penggunaan membran polimer memberi kelebihan dari segi fleksibiliti dan kecekapan tenaga yang baik, bahan ini mudah tergradasi pada persekitaran suhu dan keasidan tinggi gas serombong (Chen et al. 2023; Scholes 2020; Wu et al. 2020). Sebaliknya, bahan penyerap pepejal seperti zeolit, karbon teraktif dan rangka logam-organik (MOFs) mempunyai kestabilan kimia dan pada suhu yang tinggi dengan kelebihan seperti kos bahan yang murah dan operasi penyelenggaraan yang mudah menjadikannya alternatif yang lebih sesuai untuk operasi CCUS jangka panjang (Zhao et al. 2021).

Secara khususnya, zeolit ZSM-5 adalah bahan aluminosilikat yang mempunyai luas permukaan serta isi padu liang yang tinggi. Zeolit ini mempunyai medan elektrik yang berinteraksi dengan momen kuadrupol molekul CO_2 dan membolehkan penyerapan CO_2 secara fizikal (Al-Mamoori et al. 2025). Sifat yang dinyatakan menjadikan ZSM-5 dipilih dalam kajian melibatkan aplikasi pemisah gas dan pemangkin untuk kegunaan industri. Walau bagaimanapun, sifat bes yang lemah telah menghadkan fungsi ZSM-5 untuk menyerap CO_2 secara kimia (Bahmanzadegan & Ghaemi 2024; Mortazavi et al. 2021). Dalam konteks aplikasi gas serombong, penyerapan CO_2 secara fizikal melalui interaksi Van der Waals bersifat

lemah. Hal ini kerana, keadaan suhu tinggi dan campuran gas serombong yang kompleks memerlukan ikatan kimia yang lebih kuat antara molekul CO_2 dan bahan penyerap seperti ikatan Lewis asid-bes. Oleh itu, bagi memastikan fungsi ZSM-5 sebagai penyerap CO_2 dapat ditingkatkan, tumpuan penyelidikan terkini memfokuskan kepada teknik pengubahsuaian ZSM-5 bagi meningkatkan sifat bes ZSM-5.

Pelbagai kaedah telah dilaporkan untuk mengubah suai dan menambahbaik fungsi ZSM-5 termasuk mengubah nisbah Si/Al (Boer et al. 2023; Frantz et al. 2016; Soltani et al. 2024), pengedapan unsur bersifat bes (Xu et al. 2020) serta penambahan bahan bagi menghasilkan komposit (Ge et al. 2022; Lin et al. 2017). Antara kaedah ini, penghasilan komposit dengan ZSM-5 sering dipilih kerana ia tidak merosakkan struktur mahupun sifat kimia asal, selain tidak menjejaskan keupayaan ZSM-5 untuk menyerap CO_2 secara fizikal. Kepelbagaian bahan tambahan seperti karbon nitrida (Refaat et al. 2023), logam oksida (Rizzetto et al. 2024) dan silika (Lin et al. 2018; Liu et al. 2023) telah digunakan untuk menghasilkan penyerap komposit. Antara kesemua bahan tersebut, karbon nitrida semakin mendapat perhatian penyelidik atas kelebihan kosnya yang rendah, kestabilan terma yang tinggi serta kandungan nitrogen tersedia dalam kerangka bahan tersebut (Malik & Tomer 2021; Talapaneni et al. 2020). Kandungan nitrogen ini menyediakan tapak bes yang berupaya meningkatkan afiniti bahan terhadap CO_2 melalui interaksi Lewis asid-bes.

Sintesis bahan karbon nitrida telah dilakukan melalui dua kaedah umum seperti pempolimeran terma (Wahab et al. 2021) dan penjejalan basah (Vorokhta et al. 2025). Namun begitu, kaedah ini bersifat kompleks, mengambil masa yang lama dan memerlukan tenaga yang tinggi. Oleh itu, kajian ini memilih untuk menggunakan teknik pemendapan wap kimia secara peningkatan plasma berfrekuensi radio (RF-PECVD) untuk memendapkan filem nipis amorfus karbon nitrida (a-CN_x) ke atas ZSM-5. Pemilihan kaedah ini dilakukan bagi memastikan struktur dan fungsi asal ZSM-5 tidak terganggu dan pengenalan tapak bes nitrogen dapat dilakukan dengan berkesan dan stabil ke atas ZSM-5.

Morfologi ZSM-5 terdiri daripada struktur liang bersaiz mikro (< 2 nm) dan meso (2 - 50 nm) yang penting untuk proses penyerapan. Kebanyakan teknik pengubahsuaian bahan menyebabkan liang ini tertutup sekali gus mengurangkan luas permukaan bahan. Teknik RF-PECVD mempunyai keupayaan liputan pemendapan yang sangat baik (Abd Aziz & Awang 2020, 2019). Pemendapan filem nipis a-CN_x dapat melapisi tekstur liang ZSM-5 secara konformal. Kelebihan ini mengurangkan risiko penutupan liang ZSM-5 secara keseluruhan. Selain itu, teknik RF-PECVD juga membolehkan sintesis komposit ZSM-5/a-CN_x pada suhu rendah (< 100 °C). Kelebihan ini memastikan kecekapan tenaga yang lebih baik serta dapat mengekalkan kestabilan bahan sepanjang proses pengubahsuaian.

Namun begitu, kajian mendalam mengenai hubungan antara komposisi dan perbezaan struktur kimia ikatan C-N dan C=N terhadap kekuatan ikatan dengan molekul CO₂ belum dilakukan. Hal ini perlu mengambil kira kestabilan terma ikatan C-N dan C=N yang turut menjadi faktor kritikal terutama dalam aplikasi penjerapan CO₂ pada gas serombong bersuhu tinggi. Justeru, penyelidikan ini telah dilakukan bagi mengkaji kesan kadar aliran N₂ teknik RF-PECVD terhadap morfologi, sifat liang dan sifat kimia komposit ZSM-5/a-CN_x. Selain itu, kajian peranan kumpulan berfungsi nitrogen yang diperkenalkan melalui filem nipis a-CN_x terhadap sifat bes permukaan dan kapasiti penjerapan CO₂ turut dilakukan dan dibincangkan.

METODOLOGI

PENYEDIAAN SAMPEL ZSM-5 DAN KOMPOSIT ZSM-5/a-CN_x

Sebanyak 0.3 g serbuk ZSM-5 (Thermo Scientific Chemicals, Al₂O₃Si) dipadatkan menggunakan teknik tekanan sepaksi pada tekanan tetap 5 Pa selama 10 minit membentuk kepingan ZSM-5. Bagi menghasilkan sampel komposit ZSM-5/a-CN_x, sampel pelet ZSM-5 dimendapkan dengan filem nipis a-CN_x menggunakan sistem RF-PECVD. Tekanan pemendapan dan kuasa frekuensi radio, RF masing-masing ditetapkan sebanyak 8.2×10^{-1} mbar dan 70 W. Campuran gas nitrogen, N₂ dan metana, CH₄ dialirkan melalui pengawal aliran jisim (Mass Flow Controller, MFC) pada ubahan nisbah CH₄: N₂ seperti dalam Jadual 1.

PENCIRIAN

Pencerapan morfologi sampel dilakukan pada pembesaran 10.0 K $\times$ menggunakan mikroskop elektron pengimbasan pancaran medan (FESEM) jenama ZEISS, model SUPRA 55VP. Pencirian luas permukaan dan sifat tekstur kesemua sampel dilakukan menggunakan teknik jerapan-nyahjerapan N₂ pada suhu 77 K dengan instrumen Micromeritics ASAP 2020. Isoterma yang dijana dibandingkan dengan pengelasan IUPAC untuk menentukan bentuk dan kategori liang sama ada liang mikro (<2 nm), liang meso (2-50 nm) atau liang makro (>50 nm). Luas permukaan sampel

ditentukan melalui kaedah Brunauer-Emmett-Teller (BET) dengan isi padu liang mikro dan isi padu liang kumulatif masing-masing dikira menggunakan kaedah t-plot dan model Barrett-Joyner-Halenda (BJH). Spektroskopi transformasi Fourier inframerah (FTIR) berjenama Perkin Elmer digunakan bagi mengenal pasti komposisi ikatan kimia serta kumpulan berfungsi bagi setiap sampel. Analisis dijalankan dalam julat spektrum 4000-600 cm⁻¹. Puncak serapan yang diperoleh ditafsirkan berdasarkan kedudukan dan keamatan yang masing-masing mewakili kehadiran ikatan kimia atau kumpulan berfungsi tertentu. Data yang direkodkan kemudiannya diproses lalu menghasilkan spektrum inframerah yang dapat dianalisis dengan lebih terperinci. Spektrum yang diperoleh seterusnya ditafsirkan menggunakan model Gaussian untuk menentukan keamatan dan kuantiti ikatan kimia dan kumpulan berfungsi yang terdapat pada permukaan sampel (Radica et al. 2024). Akhir sekali, analisis penyahjerapan berprogram suhu (TPD) telah dijalankan menggunakan Micromeritics AutoChem II 2920. Analisis ini menentukan kekuatan dan taburan tapak penjerapan bersifat bes, sekali gus membolehkan penilaian terhadap kapasiti penjerapan CO₂ secara kimia oleh semua sampel.

HASIL DAN PERBINCANGAN

MORFOLOGI PERMUKAAN DAN SIFAT TEKSTUR KEPINGAN ZSM-5 DAN KOMPOSIT ZSM-5/a-CN_x

Rajah 1(a) menunjukkan morfologi permukaan ZSM-5 yang terdiri daripada struktur butiran berbucu tajam yang tersusun rapat dengan celahan antara butiran bersaiz nano dan makro. Selepas pemendapan filem nipis a-CN_x ke atas kepingan zeolit, morfologi sampel komposit ZSM-5/a-CN_x ditunjukkan dalam Rajah 1(b) hingga 1(e). Kesemua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x menunjukkan morfologi yang lebih homogen berbanding kepingan ZSM-5. Fenomena ini dipercayai berlaku disebabkan peningkatan ketumpatan radikal nitrogen reaktif dalam plasma yang membentuk lebih banyak ikatan nitrogen yang menyumbang kepada pertumbuhan filem nipis a-CN_x yang homogen (Abd Aziz & Awang 2020; Kozak et al. 2017; Ma et al. 2025). Melalui imej FESEM tersebut, tiada rekahan atau kerosakan

JADUAL 1. Pelabelan dan parameter ubahan nisbah gas CH₄:N₂ untuk komposit a-CN_x/Zeolit

Sampel	Kadar aliran gas (sccm)	
	CH ₄	N ₂
ZSM-5	-	-
ZSM-5/a-CN _x (N30)	50	30
ZSM-5/a-CN _x (N40)	50	40
ZSM-5/a-CN _x (N50)	50	50
ZSM-5/a-CN _x (N60)	50	60

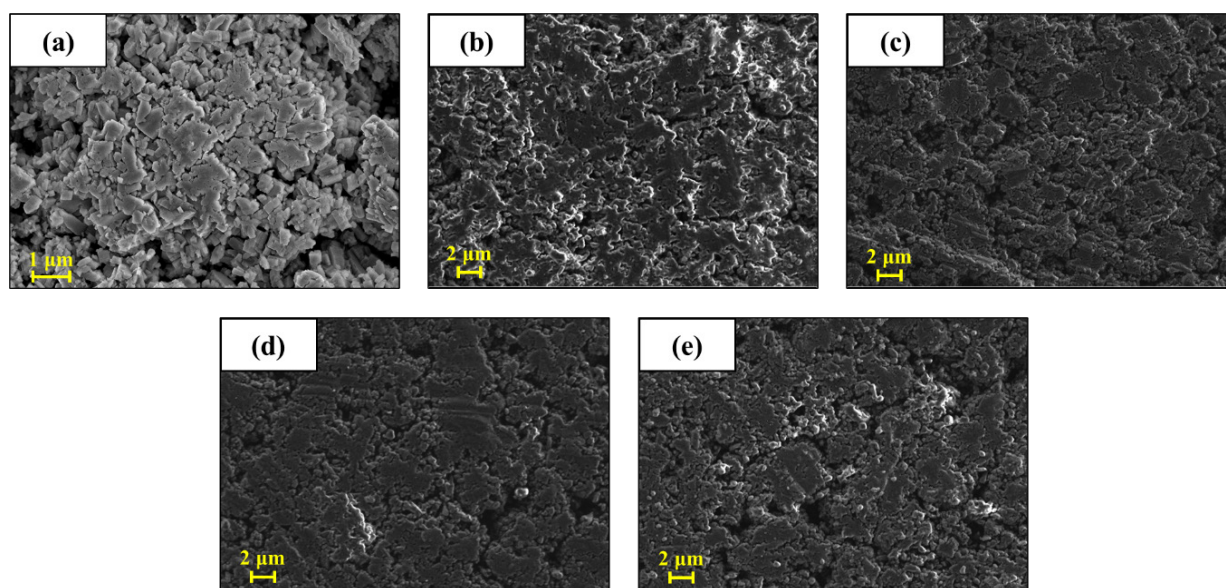
diperhatikan pada kesemua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x. Hal ini menunjukkan pemendapan filem nipis a-CN_x ke atas ZSM-5 tidak mengganggu morfologi asal ZSM-5.

Rajah 2(a) menunjukkan profil isoterma penjerapan-nyahjerapan N₂ Jenis I dengan gelung histeresis H4 bagi sampel ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x. Berdasarkan pengelasan IUPAC, corak ini mencirikan bahan yang didominasi oleh liang mikro serta kewujudan liang berbentuk celahan (Boer et al. 2023; Gallego-Gómez et al. 2020). Peningkatan kuantiti N₂ terjerap yang ketara pada tekanan relatif rendah ($P/P_0 < 0.1$) bagi semua sampel mengesahkan kewujudan rangkaian liang mikro yang lazimnya merupakan ciri utama zeolit ZSM-5 (Chouat, Bensafi & Djafri 2022; Ge et al. 2022; Kalantarifard, Ghavaminejad & Yang 2017). Pada tekanan relatif tersebut, sampel ZSM-5 menunjukkan kadar penjerapan N₂ paling tinggi yang menandakan pengisian liang mikro yang aktif. Walau bagaimanapun, kuantiti N₂ terjerap menurun secara berperingkat apabila kadar aliran N₂ semasa pemendapan filem nipis a-CN_x ditingkatkan ($\text{ZSM-5} > \text{N30} \approx \text{N40} > \text{N50} > \text{N60}$). Keputusan ini menunjukkan kebolehcapaian molekul gas ke liang mikro menjadi semakin terhad apabila filem nipis a-CN_x terbentuk pada permukaan ZSM-5.

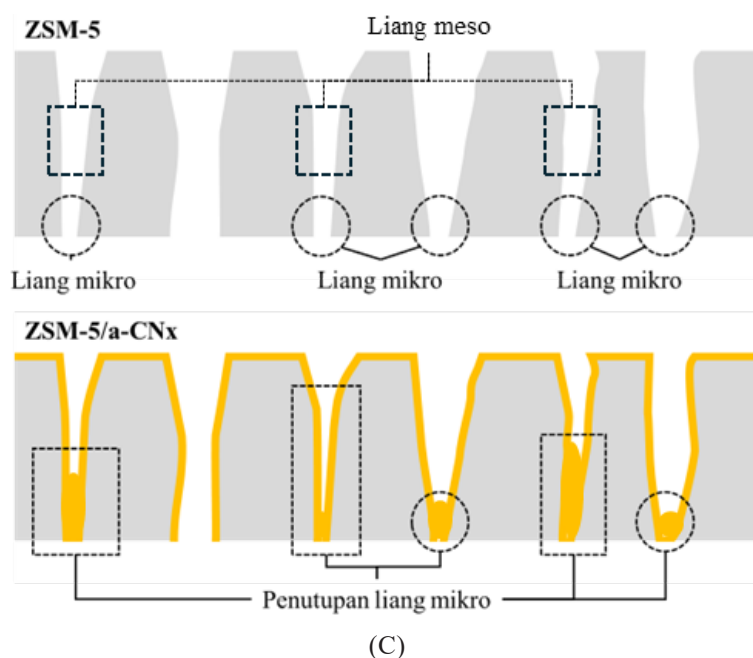
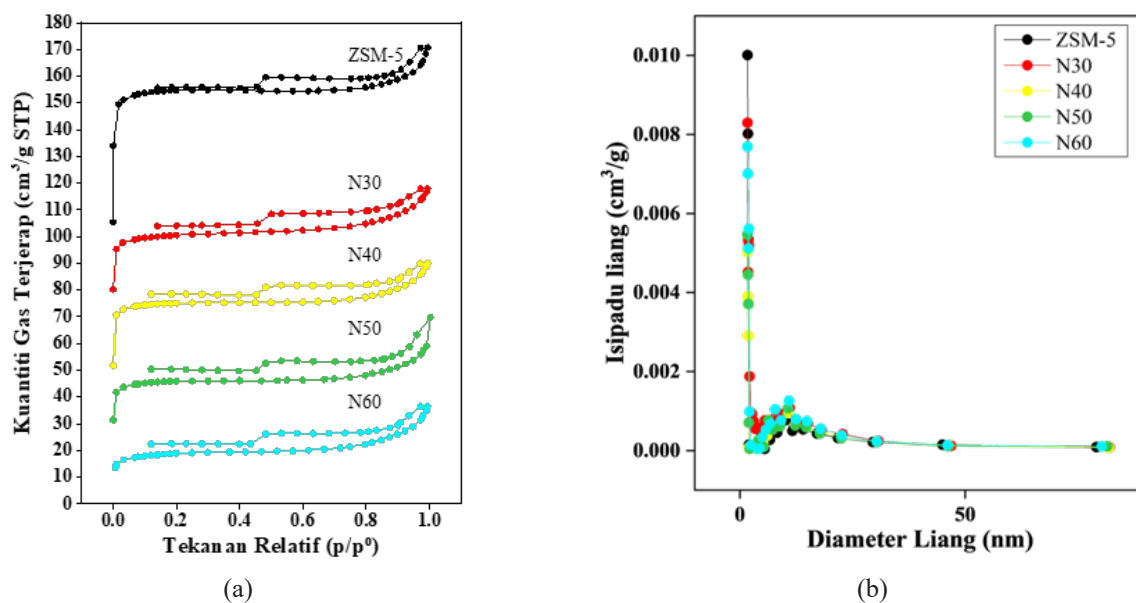
Rajah 2(b) menunjukkan taburan saiz liang ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x yang diperoleh melalui kaedah BJH. Kesemua sampel menunjukkan taburan liang yang dominan pada julat 2-10 nm iaitu dalam kategori liang meso. Keputusan ini menunjukkan bahawa walaupun semua sampel dicirikan oleh liang mikro yang dominan seperti ditunjukkan dalam Rajah 2(a), terdapat juga

kehadiran liang meso yang terbentuk daripada ruang antara zarah serta struktur celahan yang dicirikan oleh gelung histeresis H4. Oleh itu, sampel komposit dapat diuraikan sebagai bahan berstruktur mikro-meso. Selaras dengan itu, kajian oleh Chen et al. (2022) melaporkan bahawa bahan penjerap yang mempunyai rangkaian liang mikro dan meso lazimnya menunjukkan prestasi penjerapan CO₂ yang lebih baik berbanding bahan yang hanya mempunyai satu jenis liang.

Pemerhatian ini disokong oleh sifat tekstur sampel seperti yang ditunjukkan dalam Jadual 1. Sampel ZSM-5 merekodkan nilai luas permukaan khusus, S_{BET} tertinggi (323.30 m²/g) dan isi padu liang mikro, V_{mikro} sebanyak 0.114 cm³/g. Sebaliknya, sampel komposit menunjukkan penurunan S_{BET} sebanyak 37.8-61.6% dan V_{mikro} sebanyak 35.1-64.9%, selari dengan pengurangan kuantiti N₂ terjerap. Penurunan yang lebih ketara bagi N50 dan N60 menunjukkan bahawa peningkatan kadar aliran N₂ semasa pemendapan menghasilkan filem nipis a-CN_x yang lebih tumpat, sekali gus menutup sebahagian bukaan liang pada permukaan ZSM-5. Kesan ini lebih dominan pada liang mikro kerana bukaan yang kecil serta laluan resapan yang sempit menjadikannya lebih mudah tersumbat. Namun begitu, penutupan sebahagian liang mikro ini hanya memberi kesan kecil terhadap isi padu liang keseluruhan, seperti yang ditunjukkan oleh nilai V_{kum} yang tidak mengalami perubahan ketara. Keputusan ini menunjukkan bahawa pemendapan filem nipis a-CN_x berlaku secara konformal dan tidak mengubah rangkaian liang secara menyeluruh, sebaliknya hanya menutupi sebahagian ruang liang seperti ditunjukkan dalam Rajah 2(c).



RAJAH 1. Imej FESEM (a) ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x dengan ubahan kadar aliran gas N₂ (b) 30 sccm, (c) 40 sccm, (d) 50 sccm dan (e) 60 sccm



RAJAH 2. (a) Profil isoterma penjerapan-nyahjerapan N_2 , (b) Taburan saiz liang semua sampel dan (c) Ilustrasi pertumbuhan filem nipis a-CN_x pada rangkaian mikro-meso liang ZSM-5

JADUAL 1. Maklumat kuantitatif sifat tekstur sampel ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x

Sampel	Kuantiti N_2 terjerap pada $P/P_0 < 0.1$ (cm^3/g STP)	Luas permukaan, S_{BET} (m^2/g)	Isi padu liang mikro, V_{mikro} (m^3/g)	Isi padu liang terkumpul, V_{kum} (m^3/g)
ZSM-5	396.78	323.30	0.114	0.029
N30	220.03	201.23	0.068	0.033
N40	225.29	208.57	0.074	0.026
N50	190.10	171.36	0.060	0.024
N60	142.31	124.30	0.040	0.033

KOMPOSISI KIMIA PERMUKAAN ZSM-5 DAN KOMPOSIT ZSM-5/a-CN_x

Rajah 3 menunjukkan spektrum FTIR bagi ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran gas N₂ yang berbeza. Spektrum FTIR diperhatikan pada dua julat utama, iaitu julat 2800-3000 cm⁻¹ dan julat 650-1800 cm⁻¹ yang menunjukkan ikatan kimia bagi sampel ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x. Dalam kajian ini, bagi menilai pengaruh kadar aliran gas N₂ terhadap komposisi kimia filem, keamatan puncak pada spektrum FTIR telah dianalisis secara kuantitatif dan diringkaskan dalam Jadual 2.

Rajah 3(a) menunjukkan jalur regangan C-H pada julat nombor gelombang 2800-3000 cm⁻¹ bagi semua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x. Ikatan ini adalah ikatan hidrokarbon tepu yang merupakan komponen utama filem nipis a-CN_x. Ia terbentuk hasil penguraian gas pelopor CH₄ semasa proses pertumbuhan filem nipis a-CN_x. Penguraian CH₄ menghasilkan radikal hidrokarbon seperti CH, CH₂ dan CH₃ serta atom hidrogen, H yang bertindak balas antara satu sama lain dan menghasilkan ikatan C-H (Abd Aziz & Awang 2020; Jia et al. 2016). Seperti yang ditunjukkan dalam Jadual 2, keamatan ikatan C-H didapati berkurang apabila kadar aliran gas N₂ ditingkatkan. Hal ini dikaitkan dengan penjana spesies hidrokarbon yang terhad disebabkan oleh kadar aliran CH₄ yang malar (Othman et al. 2013). Apabila kadar aliran gas N₂ meningkat, tekanan separa relatif CH₄ dalam ruang kebuk plasma berkurang. Hal ini mengurangkan ketersediaan radikal hidrokarbon yang diperlukan untuk membentuk ikatan C-H. Pada masa yang sama, kadar aliran gas N₂ yang tinggi meningkatkan penjana spesies nitrogen reaktif seperti radikal amino NH dan NH₂, serta ion NH₃⁺ dan NH₄⁺. Spesies nitrogen ini secara langsung bersaing dengan radikal hidrokarbon dan atom hidrogen untuk membentuk ikatan dengan atom karbon semasa proses pertumbuhan filem nipis berlaku. Persaingan tersebut menyekat pembentukan ikatan C-H dan sebaliknya menggalakkan pembentukan ikatan C-N dan C=N seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 3(b).

Secara keseluruhannya, semua sampel menunjukkan kehadiran ikatan Si-O-T (T=Si/Al) pada nombor gelombang 788 dan 1038 dan ikatan Si-O-Si pada 1209 cm⁻¹ iaitu ikatan yang berpadanan wujud dalam ZSM-5 (Liu et al. 2023; Wang et al. 2019). Kehadiran ikatan tersebut pada kesemua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x menunjukkan bahawa struktur rangka ZSM-5 kekal terpelihara selepas pemendapan filem nipis a-CN_x. Dalam kajian ini, keamatan kepuncakan bagi ketiga-tiga ikatan tersebut meningkat selepas pemendapan filem nipis a-CN_x. Hal ini dikaitkan dengan pertindihan antara ikatan tersebut dengan getaran C-N dalam filem nipis a-CN_x, terutamanya pada puncak 1038 dan 1209 cm⁻¹ (Azman, Awang & Kamal 2014). Apabila kadar aliran N₂ meningkat, pembentukan ikatan C-N meningkat dan seterusnya menyumbang kepada peningkatan keamatan puncak tersebut.

Selain ikatan C-H dan C-N, kesemua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x juga menunjukkan jalur yang berkaitan

dengan ikatan C=C dan C=N tak tepu. Ikatan kimia tersebut berpadanan dengan komposisi kimia filem nipis a-CN_x seperti yang dilaporkan oleh kajian terdahulu (Abd Aziz & Awang 2020, 2019; Awang, Purhanudin & Salman 2018). Jalur regangan C=C yang ditunjukkan pada nombor gelombang 1456 cm⁻¹ terbentuk daripada kluster karbon hibrid sp² yang terbentuk melalui penggabungan semula radikal CH_x (cth., CH₂ + CH₂ → C=C + H₂). Seterusnya, regangan C=N yang diperhatikan pada nombor gelombang 1625 cm⁻¹ terbentuk apabila atom nitrogen menggantikan tapak karbon dalam ikatan karbon sp² C=C semasa proses pertumbuhan filem nipis a-CN_x (Aziz & Awang 2017).

Apabila kadar aliran N₂ ditingkatkan, terdapat perubahan yang ketara terhadap konfigurasi ikatan kimia bagi sampel komposit ZSM-5/a-CN_x. Dalam kajian ini, keamatan puncak C=C dan C=N mula menurun, manakala puncak C-N semakin meningkat secara tekal apabila kadar aliran N₂ ditingkatkan. Keputusan ini dikaitkan dengan transformasi ikatan C=C dan C=N kepada konfigurasi C-N apabila ketumpatan ion nitrogen meningkat dengan ketara. Semasa proses pemendapan, kadar aliran gas N₂ yang tinggi meningkatkan penjana spesies nitrogen reaktif dalam plasma. Spesies ion bertenaga ini membedil permukaan sampel dan memecahkan struktur terikat π pada ikatan C=C dan C=N lalu membentuk ikatan C-N (Othman et al. 2011; Sharma & Sharma 2022). Mekanisme ini menyumbang kepada pengurangan keamatan C=C dan C=N berkadaran terus dengan peningkatan kadar aliran gas N₂. Sampel yang didapati mengandungi ikatan C-N tertinggi adalah sampel komposit ZSM-5/a-CN_x yang dimendapkan pada kadar aliran gas N₂ 60 sccm.

Dalam kajian ini, ikatan C-N dan C=N diberi tumpuan utama kerana kedua-duanya bersifat bes dan berupaya berinteraksi secara kimia dengan atom karbon yang bersifat elektrofilik dalam molekul CO₂ (Adelodun et al. 2015). Selain itu, berdasarkan laporan oleh Dong et al. (2008), ikatan C-N yang diperhatikan dalam julat nombor gelombang 1209-1350 cm⁻¹ dan ikatan C=N pada 1625 cm⁻¹ masing-masing mempunyai konfigurasi struktur N-sp³C dan N-sp²C yang dikenal pasti memiliki kestabilan terma yang tinggi. Ciri ini dianggap penting dalam meningkatkan kapasiti penjerapan CO₂, khususnya bagi aplikasi pada suhu tinggi (Yang, Yuan & Tsang 2012; Zhang et al. 2014).

KAPASITI PENJERAPAN CO₂ ZSM-5 DAN KOMPOSIT ZSM-5/a-CN_x

Secara umumnya, luas permukaan bahan merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi kapasiti penjerapan CO₂ terutamanya secara fizikal. Walau bagaimanapun, bagi penjerapan CO₂ secara kimia, kapasiti penjerapan lebih dipengaruhi oleh sifat kimia tapak aktif pada permukaan bahan (Lim, Lee & Ham 2016). Rajah 4 menunjukkan profil CO₂-TPD bagi sampel ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran gas N₂ yang berbeza. Semua sampel menunjukkan tiga puncak penyahjerapan CO₂ yang masing-masing dikategorikan sebagai tapak

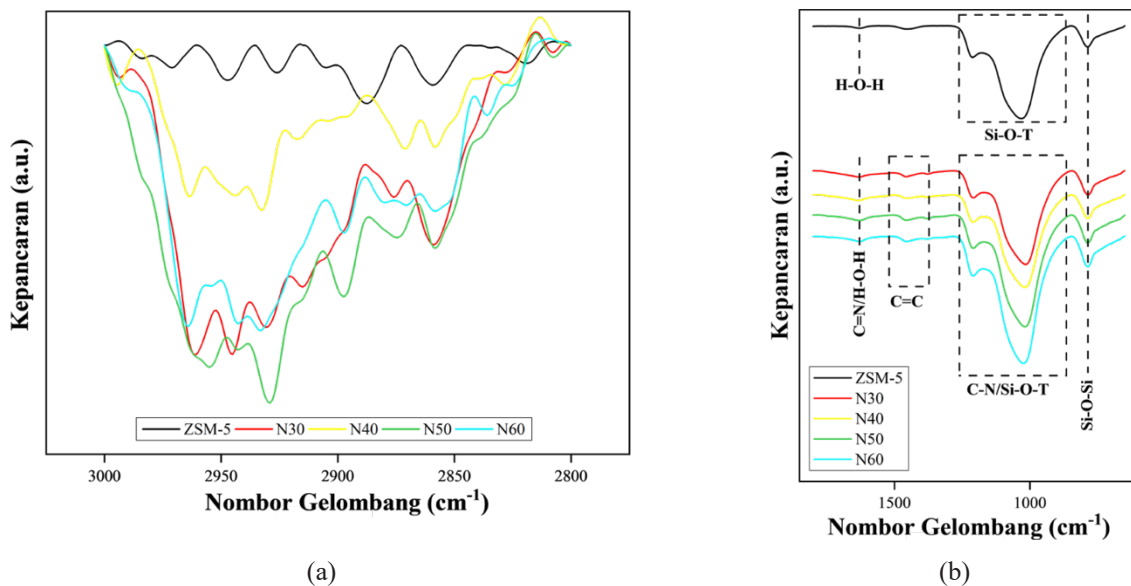
penjerapan lemah, sederhana dan kuat. Dalam kajian ini, kapasiti penjerapan CO_2 ditentukan berdasarkan kuantiti CO_2 terjerap pada tapak bes kuat yang diperoleh melalui integrasi puncak penyahjerapan suhu tertinggi dalam profil CO_2 -TPD. Jadual 3 menunjukkan jumlah CO_2 terjerap pada tapak bes kuat bagi setiap sampel yang disediakan.

Secara keseluruhan, semua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x menunjukkan kapasiti penjerapan CO_2 yang lebih baik berbanding ZSM-5 tulen. Berdasarkan analisis CO_2 -TPD, jumlah CO_2 terjerap oleh sampel ZSM-5 tulen adalah $188.55 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ (STP). Nilai ini meningkat kepada $212.04 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ bagi sampel ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran gas N_2 30 sccm dengan peningkatan kira-kira 12.5% berbanding sampel tulen. Peningkatan ini menunjukkan bahawa pengenalan filem nipis a-CN_x pada permukaan ZSM-5 telah menyumbang kepada pembentukan tapak aktif tambahan yang terlibat dalam proses penjerapan CO_2 . Dalam konteks penjerapan CO_2 secara kimia, kapasiti penjerapan CO_2 dipengaruhi oleh kekuatan tapak bes bahan penjerap yang bertindak sebagai tapak aktif untuk interaksi kimia dengan molekul CO_2 . Analisis data CO_2 -TPD menunjukkan terdapat anjakan puncak penyahjerapan ke suhu yang lebih tinggi bagi kesemua sampel komposit ZSM-5/a-CN_x yang disebabkan oleh peningkatan kekuatan tapak bes bahan. Peningkatan kekuatan tapak bes ini berkemungkinan berpunca daripada pengenalan kumpulan berfungsi dan ikatan kimia yang mengandungi nitrogen khususnya ikatan C-N dan C=N hasil daripada pertumbuhan filem nipis a-CN_x seperti yang ditunjukkan oleh spektrum FTIR.

Walau bagaimanapun, peningkatan kapasiti penjerapan CO_2 tidak menunjukkan hubungan selari dengan jumlah

keseluruhan kumpulan berfungsi nitrogen, sebaliknya lebih dipengaruhi oleh konfigurasi ikatan kimia karbon-nitrogen yang terbentuk. Fenomena ini selaras dengan laporan terdahulu yang menyatakan bahawa kumpulan berfungsi nitrogen dengan struktur yang berbeza mempunyai kekuatan tapak bes yang berbeza dan menyumbang secara berbeza terhadap penjerapan CO_2 (Shcherban et al. 2016). Dalam kajian ini, peningkatan kapasiti penjerapan CO_2 bagi sampel yang disediakan pada kadar aliran gas N_2 30 sccm dipercayai berkait rapat dengan dominasi ikatan C=N dalam struktur komposit tersebut. Analisis kuantitatif ke atas spektrum FTIR menunjukkan bahawa sampel ini mempunyai keamatan jalur C=N yang paling tinggi berbanding sampel lain. Keputusan ini disokong oleh kajian terdahulu yang melaporkan bahawa ikatan sp^2 tersebut mempunyai tenaga pengikatan CO_2 yang tinggi serta mampu meningkatkan afiniti bahan melalui interaksi Lewis bes asid (Lim, Lee & Ham 2016; Petrovic, Gorbounov & Masoudi Soltani 2021; Rehman & Park 2017). Selain itu, ikatan C=N juga dilaporkan mempunyai kestabilan terma yang lebih baik daripada ikatan C-N apabila terdedah kepada persekitaran suhu tinggi (Kovacevic et al. 2021). Oleh itu, adalah munasabah untuk mencadangkan bahawa ikatan C=N bertindak sebagai tapak bes kuat yang dominan dan menyumbang secara signifikan kepada peningkatan kapasiti penjerapan CO_2 bagi sampel ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran N_2 30 sccm.

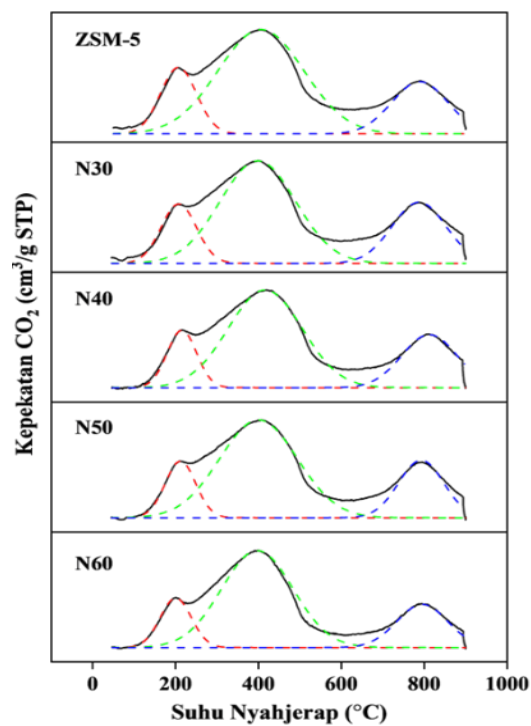
Jadual 4 menunjukkan perbandingan kapasiti penjerapan CO_2 bagi kajian ini dengan kajian terdahulu. Perbandingan dibuat dengan merujuk kepada dua kategori bahan, iaitu ZSM-5 yang diubah suai dan bahan berasaskan karbon nitrida. Komposit ZSM-5/a-CN_x yang



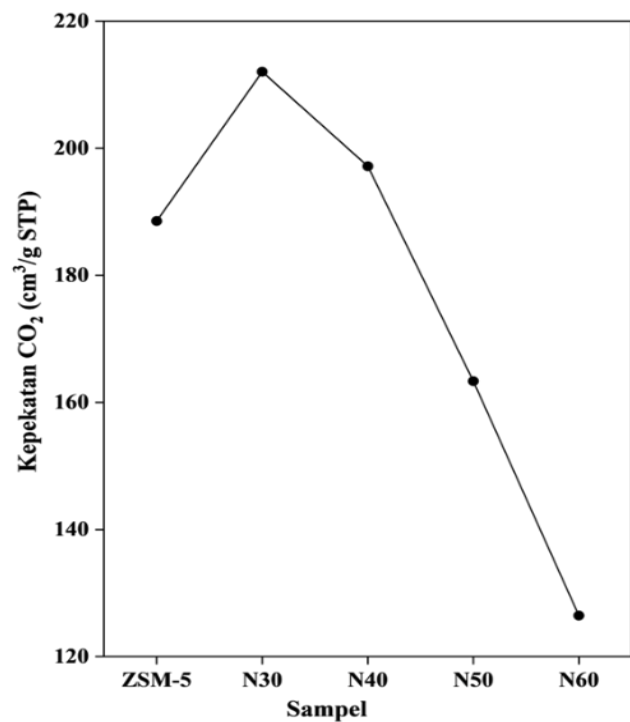
RAJAH 3. Spektrum FTIR pada julat nombor gelombang (a) 2800-3000 cm^{-1} menunjukkan ikatan C-H dan (b) 650-1800 cm^{-1} menunjukkan ikatan C-N, C=N dan C=C untuk semua sampel

JADUAL 2. Keamatan puncak FTIR bagi mod getaran terpilih pada sampel ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x

Sampel	Kadar aliran gas N ₂ (sccm)	Keamatan puncak (%)					
		Si-O-T / C-N (788 cm ⁻¹)	Si-O-T / C-N (1038 cm ⁻¹)	Si-O-Si / C-N (1209 cm ⁻¹)	C=C (1456 cm ⁻¹)	C=N (1625 cm ⁻¹)	C-H (2900 cm ⁻¹)
ZSM-5	-	487.22	5204.35	679.92			
	30	610.22	5220.71	587.78	211.48	282.84	108.63
ZSM-5/a-CN _x	40	594.73	5118.31	593.20	111.30	215.96	70.00
	50	720.61	6158.42	739.65	182.96	187.23	115.27
	60	760.91	6918.83	906.92	164.43	154.18	88.46



(a)



(b)

RAJAH 4. Profil nyahjerapan CO₂ oleh ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_xJADUAL 3. Kuantiti CO₂ yang terjerap daripada tapak bes kuat oleh ZSM-5 dan komposit ZSM-5/a-CN_x ditentukan daripada analisis CO₂-TPD

Sampel	Suhu penyahjerapan (°C)	Kuantiti CO ₂ (cm ³ /g STP)
ZSM-5	795.4	188.55
N30	798.7	212.04
N40	810.6	197.17
N50	803.1	163.34
N60	800.7	126.45

JADUAL 4. Perbandingan prestasi penjerapan CO₂ antara komposit ZSM-5/a-CN_x dengan bahan berasaskan ZSM-5 dan karbon nitrida yang dilaporkan dalam kajian terdahulu

Bahan	Kaedah penyediaan / pengubahsuaian	Kapasiti penjerapan CO ₂ (mg/g)	Rujukan
ZSM-5/a-CN _x	RF-PECVD	415.60	Kajian ini
Ca-Ni/ZSM-5	Penjejalan basah	24.10	(Xu et al. 2020)
ZSM-5/SBA-16	Pencantuman amina	41.93	(Liu et al. 2023)
1.5 Ni-0.6 Na/ZSM-5	Penjejalan isovolumetrik	86.70	(Liu et al. 2023)
Ca/ZSM-5	Penjejalan basah	6.23	(Bakare et al. 2018)
Fe/Na-ZSM-5	Pertukaran ion	10.24	(Liu et al. 2020)
MCN-7	Pempolimeran terma	594.00	(Shcherban et al. 2016)
C ₃ N ₄ /CF-24	Penjejalan basah	1100.25	(Vorokhta et al. 2025)
CN-KIT 6	Pengkarbonan	29.90	(Lakhi et al. 2015)

di optimumkan dalam kajian ini menunjukkan kapasiti penjerapan CO₂ yang setara atau lebih tinggi berbanding kebanyakan bahan berasaskan ZSM-5 dan karbon nitrida yang dilaporkan. Berbeza dengan kaedah pengubahsuaian ZSM-5 konvensional seperti pertukaran kation, penjejalan basah atau pencantuman amina, pemendapan filem nipis a-CN_x melalui teknik RF-PECVD membolehkan pengenalan tapak bes berasaskan nitrogen secara lebih seragam dan stabil tanpa menjejaskan struktur asal ZSM-5. Sintesis bahan karbon nitrida melalui kaedah penjejalan basah lazimnya melibatkan pelarut dan langkah pengeringan yang boleh menyebabkan penyumbatan liang secara tidak terkawal. Selain itu, kaedah pempolimeran terma memerlukan suhu tinggi yang berisiko merosakkan struktur dan fungsi asal ZSM-5. Sebaliknya, kaedah RF-PECVD beroperasi pada suhu lebih rendah (<100 °C) dan mempunyai keupayaan liputan langkah yang baik, sekali gus mengekalkan sebahagian besar tekstur liang serta menyokong penjerapan CO₂ secara kimia melalui kumpulan berfungsi nitrogen. Oleh itu, keputusan kajian ini mengesahkan teknik RF-PECVD sebagai pendekatan yang relevan dan berpotensi tinggi untuk pengubahsuaian ZSM-5 bagi aplikasi penjerapan CO₂.

KESIMPULAN

Melalui kajian ini, penghasilan komposit ZSM-5/a-CN_x melalui pemendapan filem nipis a-CN_x menggunakan teknik RF-PECVD telah berjaya mengubah suai morfologi, tekstur dan sifat kimia ZSM-5. Pengawasan kadar aliran gas N₂ semasa proses pemendapan memainkan peranan penting bagi meningkatkan kapasiti penjerapan CO₂ oleh komposit ZSM-5/a-CN_x, bersesuaian dengan aplikasi gas serombong bersuhu tinggi. Pemendapan filem nipis a-CN_x dengan kadar aliran gas N₂ yang berlebihan boleh menyebabkan penurunan luas permukaan sampel yang drastik disebabkan oleh penutupan sebahagian besar liang pada permukaan sampel. Pengenalan kumpulan berfungsi C-N dan C=N menambahkan tapak bes Lewis pada permukaan komposit,

sekali gus meningkatkan interaksi kimia dengan molekul CO₂. Hasil pencirian menggunakan TPD mengesahkan bahawa sampel komposit ZSM-5/a-CN_x yang disediakan pada kadar aliran nitrogen 30 sccm memberikan kapasiti penjerapan CO₂ tertinggi dengan peningkatan sebanyak 12.46% berbanding ZSM-5 asli. Keputusan ini dikaitkan dengan keamatan ikatan C=N yang lebih dominan pada kadar aliran nitrogen rendah, seterusnya menyumbang secara signifikan terhadap peningkatan tapak bes kuat untuk penjerapan CO₂ secara kimia. Pengoptimuman kadar aliran gas N₂ dalam kajian ini menunjukkan bahawa prestasi penjerapan CO₂ lebih bergantung kepada jenis dan konfigurasi kumpulan berfungsi nitrogen berbanding jumlah kandungan nitrogen keseluruhan.

PENGHARGAAN

Kami ingin merakamkan setinggi-tinggi penghargaan kepada Kementerian Pendidikan Tinggi, (KPT), Malaysia atas sokongan kewangan (FRGS/1/2024/STG07/UKM/02/5) dan Universiti Kebangsaan Malaysia atas kemudahan penyelidikan yang telah membolehkan kajian ini dijalankan dengan jayanya.

RUJUKAN

- Abd Aziz, S.A. & Awang, R. 2020. Komposisi ikatan kimia dan mekanisme pertumbuhan filem nipis a-CN_x oleh teknik rf-PECVD suhu rendah. *Sains Malaysiana* 49(6): 1461-1470. doi:10.17576/jsm-2020-4906-24
- Abd Aziz, S.A. & Awang, R. 2019. Chemical bonding composition and growth mechanism of a-CN_x thin films by low-temperature rf-PECVD technique. *International Journal of Innovative Science, Engineering & Technology* 6: 177-184.
- Adelodun, A.A., Kim, K.H., Ngila, J.C. & Szulejko, J. 2015. A review on the effect of amination pretreatment for the selective separation of CO₂. *Applied Energy* 158: 631-642. doi:10.1016/j.apenergy.2015.08.107

- Al-Mamoori, A., Saed, U.A., Saoud, A.A., Abdul Jabbar, M.F., Jasim, A., Sh Majdi, H., Hanif, A. & Iacomi, P. 2025. Modification of the zeolite ZSM-5 adsorbent for CO₂ capture. *ACS Omega* 10(20): 20129-20141. doi:10.1021/acsomega.4c09747
- Awang, R., Purhanudin, N. & Salman, N.S. 2018. Effect of radio frequency power on a-CN_x film properties and its performance as humidity sensors. *Sains Malaysiana* 47(11): 2863-2867. doi:10.17576/jsm-2018-4711-29
- Aziz, S.A.A. & Awang, R. 2017. Kesan kuasa frekuensi radio terhadap komposisi ikatan kimia filem nipis a-CN_x sebagai pengesan kelembapan. *Sains Malaysiana* 46(10): 1951-1958. doi:10.17576/jsm-2017-4610-34
- Azman, N.I., Awang, R. & Kamal, S.A.A. 2014. Influence of deposition time on the chemical bonding and composition of amorphous carbon nitride films. *AIP Conference Proceedings* 1614: 74-77. doi:10.1063/1.4895174
- Bahmanzadegan, F. & Ghaemi, A. 2024. Modification and functionalization of zeolites to improve the efficiency of CO₂ adsorption: A review. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering* 9: 100564. doi:10.1016/j.cscee.2023.100564
- Bakare, I.A., Muraza, O., Sanhoob, M.A., Miyake, K., Hirota, Y., Yamani, Z.H. & Nishiyama, N. 2018. Dimethyl ether-to-olefins over aluminum rich ZSM-5: The role of Ca and La as modifiers. *Fuels* 211: 18-26. doi:10.1016/j.fuel.2017.08.117
- Boer, D.G., Asgar Pour, Z., Poli, S., Langerak, J., Bakker, B. & Pescarmona, P.P. 2023. ZSM-5/Silicalite-1 core-shell beads as CO₂ adsorbents with increased hydrophobicity. *Materials Today Chemistry* 32: 101621. doi:10.1016/j.mtchem.2023.101621
- Chen, D., Wang, K., Yuan, Z., Lin, Z., Zhang, M., Li, Y., Tang, J., Liang, Z., Li, Y., Chen, L., Li, L., Huang, X., Pan, S., Zhu, Z., Hong, Z. & He, X. 2023. Boosting membranes for CO₂ capture toward industrial decarbonization. *Carbon Capture Science and Technology* 7: 100117. doi:10.1016/j.ccs.2023.100117
- Chen, Y., Wu, J., Wang, X., Liu, M. & Liu, Y. 2022. Synthesis, characterization and application of amine-functionalized hierarchically micro-mesoporous silicon composites for CO₂ capture in flue gas. *Molecules* 27(11): 3429. doi:10.3390/molecules27113429
- Chouat, N., Bensafi, B. & Djafri, F. 2022. Enhancement of carbon dioxide adsorption over alkali-cations borosilicate ZSM-5 zeolite. *Silicon* 14(13): 8055-8065. doi:10.1007/s12633-021-01563-w
- Dong, Z.B., Lu, Y.F., Gao, K., Shi, L.Q., Sun, J., Xu, N. & Wu, J.D. 2008. Thermal stability of carbon nitride thin films prepared by electron cyclotron resonance plasma assisted pulsed laser deposition. *Thin Solid Films* 516(23): 8594-8598. Doi:10.1016/j.tsf.2008.06.013
- Fernandez, M.I., Go, Y.I., Wong, M.L.D. & Früh, W.G. 2024. Malaysia's energy transition and readiness towards attaining net zero: Review of the potential, constraints, and enablers. *Renewable Energy Focus* 51: 100640. doi:10.1016/j.ref.2024.100640
- Frantz, T.S., Ruiz, W.A., Da Rosa, C.A. & Mortola, V.B. 2016. Synthesis of ZSM-5 with high sodium content for CO₂ adsorption. *Microporous and Mesoporous Materials* 222: 209-217. doi:10.1016/j.micromeso.2015.10.022
- Gallego-Gómez, F., Farrando-Pérez, J., López, C. & Silvestre-Albero, J. 2020. Micropore filling and multilayer formation in Stöber spheres upon water adsorption. *Journal of Physical Chemistry C* 124(38): 20922-20930. doi:10.1021/acs.jpcc.0c05313
- Ge, L., Wei, J., Geng, L., Chen, S. & Liao, L. 2022. Amine-bifunctionalized ZSM-5/SBA-16 composite for CO₂ adsorption. *Journal of Porous Materials* 29(1): 19-31. doi:10.1007/s10934-021-01146-5
- Jia, L., Sugiura, H., Kondo, H., Takeda, K., Ishikawa, K., Oda, O., Sekine, M., Hiramatsu, M. & Hori, M. 2016. Effects of radical species on structural and electronic properties of amorphous carbon films deposited by radical-injection plasma-enhanced chemical vapor deposition. *Plasma Processes and Polymers* 13(7): 730-736. doi:10.1002/ppap.201500229
- Kalantarifard, A., Ghavaminejad, A. & Yang, G.S. 2017. High CO₂ adsorption on improved ZSM-5 zeolite porous structure modified with ethylenediamine and desorption characteristics with microwave. *Journal of Material Cycles and Waste Management* 19(1): 394-405. doi:10.1007/s10163-015-0436-1
- Kovacevic, E., Strunskus, T., M. Santhosh, N., Zavašnik, J., Unger, W.E.S., Sauvage, T., Ammar, M.R., Cvelbar, U. & Berndt, J. 2021. Thermal stability studies of plasma deposited hydrogenated carbon nitride nanostructures. *Carbon* 184: 82-90. doi:10.1016/j.carbon.2021.08.008
- Kozak, A.O., Porada, O.K., Ivashchenko, V.I., Ivashchenko, L.A., Scrynskyy, P.L., Tomila, T.V. & Manzharova, V.S. 2017. Comparative investigation of Si-C-N Films prepared by plasma enhanced chemical vapour deposition and magnetron sputtering. *Applied Surface Science* 425: 646-653. doi:10.1016/j.apsusc.2017.06.332
- Lakhi, K.S., Cha, W.S., Joseph, S., Wood, B.J., Aldeyab, S.S., Lawrence, G., Choy, J.H. & Vinu, A. 2015. Cage type mesoporous carbon nitride with large mesopores for CO₂ capture. *Catalysis Today* 243(C): 209-217. doi:10.1016/j.cattod.2014.08.036
- Lim, G., Lee, K.B. & Ham, H.C. 2016. Effect of N-containing functional groups on CO₂ adsorption of carbonaceous materials: A density functional theory approach. *Journal of Physical Chemistry C* 120(15): 8087-8095. doi:10.1021/acs.jpcc.5b12090

- Lin, Z., Wei, J., Geng, L., Mei, D. & Liao, L. 2018. An amine double functionalized composite strategy for CO₂ adsorbent preparation using a ZSM-5/KIT-6 composite as a support. *Energy Technology* 6(9): 1618-1626. doi:10.1002/ente.201700780
- Lin, Z., Wei, J., Geng, L., Mei, D. & Liao, L. 2017. Composites ZSM-5/KIT-6 synthesized via assembly modification procedure and mechanical grinding procedure, respectively, and their application to CO₂ adsorption. *Water, Air, and Soil Pollution* 228(11): 412. doi:10.1007/s11270-017-3599-7
- Liu, Q., Fang, Y., Miao, C., Liao, Z., Lu, J., Li, J., Wu, X. & Nulahong, A. 2023. Preparation of ZSM-5 molecular sieve modified by kaolin and its CO₂ adsorption performance investigation. *Microporous and Mesoporous Materials* 360: 112678. doi:10.1016/j.micromeso.2023.112678
- Liu, R., Ma, Z., Sears, D., Juneau, M., Neidig, M.L. & Poroso, M.D. 2020. Identifying correlations in Fischer-Tropsch synthesis and CO₂ hydrogenation over Fe-based ZSM-5 catalysts 41: 101290. doi:10.1016/j.jcou.2020.101290
- Liu, T., Guo, Y., Luo, L., Ye, M., Liu, W. & Zhu, T. 2023. Interactive adsorption mechanism and product distribution of impurity gases on CO₂ adsorption over amine-grafted ZSM-5/SBA-16 adsorbent. *Fuel* 354: 129307. doi:10.1016/j.fuel.2023.129307
- Ma, Y., Qian, J., Zhu, P., Ding, J., Sun, K., Gou, H., Abirov, R. & Zhang, Q. 2025. Carbon nanosheets grown via RF-PECVD on graphite films and thermal properties of graphite film/aluminum composites. *Nanomaterials* 15(10): 773. doi:10.3390/nano15100773
- Malik, R. & Tomer, V.K. 2021. State-of-the-art review of morphological advancements in graphitic carbon nitride (g-CN) for sustainable hydrogen production. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 135: 110235. doi:10.1016/j.rser.2020.110235
- Mortazavi, N., Bahadori, M., Marandi, A., Tangestaninejad, S., Moghadam, M., Mirkhani, V. & Mohammadpoor-Baltork, I. 2021. Enhancement of CO₂ adsorption on natural zeolite, modified clinoptilolite with cations, amines and ionic liquids. *Sustainable Chemistry and Pharmacy* 22: 100495. doi:10.1016/j.scp.2021.100495
- Othman, M., Ritikos, R., Khanis, N.H., Rashid, N.M.A., Gani, S.M.A. & Rahman, S.A. 2013. Effect of N₂ flow rate on the properties of CNx thin films prepared by radio frequency plasma enhanced chemical vapor deposition from ethane and nitrogen. *Thin Solid Films* 529: 439-443. doi:10.1016/j.tsf.2012.03.090
- Othman, M., Ritikos, R., Khanis, N.H., Abdul Rashid, N.M., Abdul Rahman, S., Ab Gani, S.M. & Muhamad, M.R. 2011. Effects of rf power on the structural properties of carbon nitride thin films prepared by plasma enhanced chemical vapour deposition. *Thin Solid Films* 519(15): 4981-4986. doi:10.1016/j.tsf.2011.01.065
- Petrovic, B., Gorbounov, M. & Masoudi Soltani, S. 2021. Influence of surface modification on selective CO₂ adsorption: A technical review on mechanisms and methods. *Microporous and Mesoporous Materials* 312: 110751. doi:10.1016/j.micromeso.2020.110751
- Radica, F., Cassetta, M., Iezzi, G., Pisello, A., Vetere, F., Del Vecchio, A., Cestelli Guidi, M. & Poe, B.T. 2024. Short-range order and chemical compositions of glasses along the basaltic-rhyolite sub-alkaline join by Raman and FTIR spectroscopies. *Chemical Geology* 648: 121938. doi:10.1016/j.chemgeo.2024.121938
- Refaat, Z., El Saied, M., Naga, A.O.A., El Shaban, S.A., Hassan, H.B., Shehata, M.R. & Kady, F.Y.E. 2023. Mesoporous carbon nitride supported MgO for enhanced CO₂ capture. *Environmental Science and Pollution Research* 30(18): 53817-53832. doi:10.1007/s11356-023-26013-5
- Rehman, A. & Park, S.J. 2017. Facile synthesis of nitrogen-enriched microporous carbons derived from imine and benzimidazole-linked polymeric framework for efficient CO₂ adsorption. *Journal of CO₂ Utilization* 21: 503-512. doi:10.1016/j.jcou.2017.08.016
- Rizzetto, A., Piumetti, M., Pirone, R., Sartoretti, E. & Bensaid, S. 2024. Study of ceria-composite materials for high-temperature CO₂ capture and their ruthenium functionalization for methane production. *Catalysis Today* 429: 114478. doi:10.1016/j.cattod.2023.114478
- Scholes, C.A. 2020. Challenges for CO₂ capture by membranes. In *Advances in Carbon Capture*, disunting oleh Rahimpour, M.R., Farsi, M. & Makarem, M.A. Woodhead Publishing. hlm. 357-377. doi:10.1016/B978-0-12-819657-1.00016-5
- Sharma, S. & Sharma, S.C. 2022. Effect of plasma control parameters on the growth of nitrogen-doped nanocone-vertical graphene hybrid: Theoretical investigations. *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 42(2): 413-433. doi:10.1007/s11090-022-10229-3
- Shcherban, N.D., Filonenko, S.M., Yaremov, P.S., Skoryk, M., Ilyin, V.G., Aho, A. & Murzin, D.Y. 2016. Synthesis, structure and adsorption properties of nonstoichiometric carbon nitride in comparison with nitrogen-containing carbons. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 34: 292-299. doi:10.1016/j.jiec.2015.11.023
- Soltani, S., Zamaniyan, A., Darian, J.T. & Soltanali, S. 2024. The effect of Si/Al ratio of ZSM-12 zeolite on its morphology, acidity and crystal size for the catalytic performance in the HTO process. *RSC Advances* 14(8): 5380-5389. doi:10.1039/d3ra08792a
- Sukor, N.R., Shamsuddin, A.H., Meurah, T. & Mahlia, I. 2020. Techno-economic analysis of CO₂ capture technologies in offshore natural gas field: Implications to carbon capture and storage in Malaysia. *Processes* 8(3): 350. doi:10.3390/pr8030350

- Talapneni, S.N., Singh, G., Kim, I.Y., AlBahily, K., Al-Muhtaseb, A.H., Karakoti, A.S., Tavakkoli, E. & Vinu, A. 2020. Nanostructured carbon nitrides for CO₂ capture and conversion. *Advanced Materials* 32(18): 1904635. doi:10.1002/adma.201904635
- Vorokhta, M., Irfan, M., Kusdhany, M. & Švábová, M. 2025. Hierarchically porous carbon foams coated with carbon nitride: Insights into adsorbents for pre-combustion and post-combustion CO₂ separation 354: 129054. doi:10.1016/j.seppur.2024.129054
- Wahab, M.A., Na, J., Masud, M.K., Hossain, M.S.A., Alothman, A.A. & Abdala, A. 2021. Nanoporous carbon nitride with a high content of inbuilt N site for the CO₂ capture. *Journal of Hazardous Materials* 408: 124843. doi:10.1016/j.jhazmat.2020.124843
- Wang, Y., Du, T., Fang, X., Jia, H., Qiu, Z. & Song, Y. 2019. Synthesis of CO₂ -adsorbing ZSM-5 zeolite from rice husk ash via the colloidal pretreatment method. *Materials Chemistry and Physics* 232: 284-293. doi:10.1016/j.matchemphys.2019.04.090
- Wu, Y., Guo, Z., Wu, H., Zhu, K., Yang, L., Ren, Y., Liu, Y., Wu, X., Zhao, R., Ali Khan, N., M. Ahmad, N., Younas, M. & Jiang, Z. 2020. Plasticization- and aging-resistant membranes with venation-like architecture for efficient carbon capture. *Journal of Membrane Science* 609: 118215. doi:10.1016/j.memsci.2020.118215
- Xu, W., Chen, B., Jiang, X., Xu, F., Chen, X., Chen, L., Wu, J., Fu, M. & Ye, D. 2020. Effect of calcium addition in plasma catalysis for toluene removal by Ni/ZSM-5: Acidity/basicity, catalytic activity and reaction mechanism. *Journal of Hazardous Materials* 387: 122004. doi:10.1016/j.jhazmat.2019.122004
- Yang, H., Yuan, Y. & Tsang, S. C. E. 2012. Nitrogen-enriched carbonaceous materials with hierarchical micro-mesopore structures for efficient CO₂ capture. *Chemical Engineering Journal* 185: 374-379. doi:10.1016/j.cej.2012.01.083
- Zhang, Z., Wang, B., Sun, Q. & Zheng, L. 2014. A novel method for the preparation of CO₂ sorption sorbents with high performance. *Applied Energy* 123: 179-184. doi:10.1016/j.apenergy.2014.02.012
- Zhao, P., Zhang, G., Yan, H. & Zhao, Y. 2021. The latest development on amine functionalized solid adsorbents for post-combustion CO₂ capture: Analysis review. *Chinese Journal of Chemical Engineering* 35: 17-43. doi:10.1016/j.cjche.2020.11.028

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: rozida@ukm.edu.my