

PENGARUH RASIO REAKTAN PADA IMPREGNASI DAN SUHU REDUKSI TERHADAP KARAKTER KATALIS KOBALT/ZEOLIT ALAM AKTIF

Tri Kurnia Dewi^{*}, Mahdi, Teguh Novriyansyah

^{*}Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Sriwijaya
Jln. Raya Palembang – Prabumulih Km.32 Inderalaya Ogan Ilir (OI) 30662
E-mail : tkdewi@yahoo.com

Abstrak

Pada proses reaksi kimia seperti hidrogenasi, *cracking* maupun *hydrocracking*, dibutuhkan katalis perengkah yang merupakan katalis heterogen. Salah satu jenis katalis heterogen adalah katalis logam-pengemban, yang terdiri dari logam yang diemban pada bahan pengemban padat seperti zeolit alam aktif. Pada penelitian ini, dilakukan pengembanan katalis logam kobalt ke dalam zeolit alam aktif melalui metode impregnasi. Variabel yang diteliti pada penelitian ini adalah rasio berat reaktan (Co dan zeolit alam aktif) pada impregnasi katalis dengan variasi 2:20; 3:20; 4:20; 5:20 dan 6:20 serta suhu reduksi dengan variasi 250°C; 300°C; 350°C; 400°C dan 450°C. Produk katalis Co/ZAA dianalisa tingkat keasamannya dengan cara adsorpsi amoniad dan piridin. Luas permukaan katalis Co/ZAA dianalisa menggunakan *Surface Area Analyzer* dengan metode BET. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar rasio berat reaktan kobalt/zeolit alam aktif maka semakin besar pula keasaman dan luas permukaan katalis yang terbentuk. Keasaman dan luas permukaan katalis Co/ZAA juga mengalami kenaikan seiring dengan kenaikan suhu reduksi. Keasaman katalis terbesar pada penelitian ini adalah pada rasio reaktan Co/ZAA 6:20 dan pada suhu reduksi 450 °C yaitu masing-masing 6,4615 mol/g dan 7,5202 mol/g (keasaman dengan adsorbat amonia), 2,6047 mol/g dan 3,6662 mol/g (keasaman dengan adsorbat piridin). Luas permukaan katalis terbesar pada penelitian ini adalah pada rasio berat reaktan Co/ZAA 6:20 yaitu 32,63 m²/g dan pada suhu reduksi 450 °C yaitu 38,95 m²/g.

Kata kunci: impregnasi, katalis Co/ZAA, keasaman

Abstract

In the process of chemical reactions such as hydrogenation, cracking and hydrocracking, be required a catalyst cracking is a heterogeneous catalyst. One type of heterogeneous catalyst is a metal-carrier catalyst, which consists of a metal that pasted on a solid carrier materials such as natural zeolite active. In this study, pasted cobalt metal catalyst in natural zeolite active through impregnation method was carried out. Variables examined in this study is the weight ratio of reactants (Co and natural zeolite active) on the impregnation catalyst with variations 2:20; 3:20; 4:20; 5:20 and 6:20 as well as the reduction of temperature variations 250 °C; 300 °C; 350 °C; 400 °C and 450 °C. Catalyst products Co/ZAA analyzed the level of acidity by means of ammonia and pyridine adsorption. The surface area of the catalyst Co/ZAA analyzed using Surface Area Analyzer with the BET method. The results showed that the greater the weight ratio of reactants cobalt/natural zeolite active, the greater the acidity and surface area of the catalyst is formed. Acidity and surface area of the catalyst Co/ZAA also increased along with the increase in temperature reduction. The biggest acidity of the catalyst in this study is the ratio of reactants Co/ZAA 6:20 and at a temperature reduction of 450 °C, respectively 6.4615 mol/g and 7.5202 mol/g (acidity with ammonia adsorbat), 2.6047 mol/g and 3.6662 mol/g (acidity with pyridine adsorbat). The largest surface area of the catalyst in this study is the weight ratio of reactants Co/ZAA 6:20 namely 32.63 m²/g and at a temperature reduction of 450 °C is 38.95 m²/g.

Keywords: impregnation, the catalyst Co/ZAA, acidity

1. PENDAHULUAN

Pada proses reaksi kimia seperti hidrogenasi, *cracking* maupun *hydrocracking*, dibutuhkan katalis perengkah yang merupakan katalis heterogen. Salah satu jenis katalis heterogen adalah katalis logam-pengemban, yang terdiri dari logam yang diemban pada bahan pengemban padat seperti silika-alumina, alumina dan zeolit alam aktif. Zeolit alam aktif merupakan bahan pengemban yang banyak digunakan. Hal ini karena zeolit alam aktif memiliki permukaan yang luas, pori-pori yang besar dan sisi aktif serta harganya lebih murah.

Pengembangan logam pada zeolit alam aktif merupakan suatu usaha untuk memperbaiki karakter dan mengatasi kelemahan katalis logam murni. Hal ini karena penggunaan katalis logam murni memiliki beberapa kesulitan, antara lain stabilitas termal yang rendah, mudah mengalami penurunan luas permukaan akibat pemanasan dan mudah mengalami *sintering* (penggumpalan) serta harganya yang tinggi. Pemakaian zeolit alam aktif sebagai pengemban memberikan dasar yang stabil sehingga dapat memperbesar luas permukaan katalis dan memperpanjang waktu pakai katalis. Pengembangan logam pada zeolit alam aktif juga mampu meningkatkan jumlah situs asam total (keasaman) katalis. Jumlah situs ini penting karena merupakan salah satu karakter yang menentukan aktivitas katalis.

Proses pengembangan katalis logam pada zeolit alam aktif dapat dilakukan dengan metode impregnasi. Metode ini tergolong paling mudah dan sederhana. Peralatan yang digunakan juga lebih sedikit karena tidak ada langkah penyaringan dan pencucian. Menurut Anwar, C (2011) dan Suharto (2007), logam-logam transisi seperti Cr, Ni, Pt, dan Ti telah diteliti sebagai logam yang diemban pada zeolit alam aktif melalui impregnasi dengan hasil yang baik. Berdasarkan hal tersebut, maka pada penelitian ini dicoba melakukan pengembangan logam Co pada zeolit alam aktif melalui impregnasi. Pemilihan logam Co didasarkan pada harganya yang lebih murah dibandingkan logam Pt dan Ni. Selain itu, Thaib, Amril (1995) juga melaporkan bahwa Co memiliki sifat magnetik yang baik untuk dijadikan katalis.

Katalis

Katalis merupakan zat yang ditambahkan ke dalam suatu reaksi dengan maksud mempercepat laju reaksi. Katalis terlibat dalam suatu reaksi namun tidak mengalami perubahan kimia pada akhir reaksi. Hal ini ditunjukkan dengan dijumpainya kembali katalis dalam bentuk dan jumlah yang sama seperti sebelum bereaksi.

Berdasarkan perbedaan fase katalis dan reaktan, katalis dibagi menjadi dua jenis, yaitu katalis homogen dan katalis heterogen.

1) Katalis Homogen

Katalis homogen adalah katalis yang memiliki fase yang sama dengan reaktan. Katalis homogen berfungsi sebagai fasilitator atau zat perantara. Pada katalis ini, reaktan dan katalis terdispersi dalam satu fase yaitu fase cair.

2) Katalis Heterogen

Katalis heterogen didefinisikan sebagai katalis yang mempunyai fase berbeda dari reaktan ataupun produk pada suatu reaksi. Reaksi katalisis heterogen biasanya menggunakan katalis dari fase padat yang berinteraksi dengan reaktan pada fase yang berbeda yaitu gas atau cair. Pada umumnya, reaksi antara reaktan dan katalis heterogen terjadi di permukaan katalis.

Adapun perbedaan karakteristik antara katalis heterogen dan katalis homogen dapat dilihat pada tabel 1. yang ada di bawah ini.

Tabel 1. Karakteristik Katalis Heterogen dan Homogen

Karakteristik	Katalis Heterogen	Katalis Homogen
Pusat reaktif	Hanya pada permukaan	Semua atom logam
Jumlah pemakaian	Banyak	Kecil
Massa difusi	Terjadi	Tidak terjadi
Selektifitas	Rendah	Tinggi
Stokiometri	Tidak dikenal	Dapat diketahui
Modifikasi	Sukar	Mudah
Kondisi reaksi	Tinggi	Sedang
Pemisahan katalis dan produk	Mudah	Sulit

Sumber: Wahyudi. I, 2012

Katalis Logam

Katalis logam terutama kelompok logam-logam transisi memiliki kemampuan untuk mengadsorpsi hidrogen. Dengan demikian, katalis logam dapat digunakan untuk reaksi hidrogenasi. Kekuatan ikatan logam dengan hidrogen meningkat seiring dengan peningkatan jumlah orbital d yang kosong.

Aktivitas katalisis dapat mencapai maksimum apabila logam hanya memiliki satu orbital d yang kosong. Sebagai contoh logam Co yang memiliki nomor atom 27, maka konfigurasi elektronnya adalah $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^7 4s^2$.

Berdasarkan konfigurasi elektron tersebut menunjukkan bahwa logam Co yang mempunyai 1-3 orbital d yang kosong, sehingga logam Co dapat digunakan sebagai inti aktif katalis dalam reaksi hidrogenasi.

Katalis Heterogen Logam-Pengembangan

Katalis heterogen logam-pengembangan adalah katalis heterogen yang logam aktifnya didispersikan ke dalam bahan pengembangan. Pengembangan logam pada bahan pengembangan merupakan suatu usaha untuk memperbaiki sifat dan mengatasi kelemahan katalis logam murni. Hal ini karena penggunaan katalis logam murni memiliki beberapa kelemahan, antara lain memiliki stabilitas termal yang rendah, mudah mengalami penurunan luas permukaan akibat pemanasan, mudah mengalami *sintering* (penggumpalan) dan harganya yang tinggi. Pemakaian bahan pengembangan dapat memberikan dasar yang stabil sehingga dapat memperluas permukaan katalis dan memperpanjang waktu pakai katalis. Pengembangan logam pada zeolit alam aktif juga mampu meningkatkan jumlah situs asam total (keasaman) katalis. Jumlah situs ini penting karena merupakan salah satu karakter yang menentukan aktivitas katalis.

Dalam penggunaan katalis logam-pengembangan, biasanya logam didispersikan pada bahan pengembangan dalam bentuk yang kecil sehingga kebanyakan atom-atom logam terdapat pada permukaan pengembangan. Bahan pengembangan memiliki fungsi utama yaitu memberikan suatu kerangka struktur untuk komponen aktif dan meningkatkan luas permukaan logam per satuan berat logam. Selain itu, pengembangan juga dapat

meningkatkan kestabilan katalis karena keberadaan kristal-kristal kecil dari logam yang terpisah sehingga mencegah terjadinya *sintering* serta menaikkan ketahanan terhadap peracunan katalis.

Pemilihan bahan pengembangan tergantung pada maksud penggunaan katalis. Aktivitas logam yang maksimum berhubungan dengan penyerapan kimia (*chemisorption*) dari reaktan-reaktan yang cepat tapi tidak terlalu kuat. Dalam sintesis katalis, langkah pertama yang dilakukan adalah pemilihan bahan pengembangan untuk mendapatkan katalis yang optimal. Bahan pengembangan yang tepat akan menjamin:

- Penyebaran atau dispersi yang tinggi dari komponen aktif katalis.
- Tercapainya distribusi komponen aktif sepanjang permukaan pengembangan.
- Tidak adanya interaksi dari komponen aktif dengan pengembangan yang dapat menurunkan keaktifan katalis.
- Adanya kemampuan mekanik yang tinggi dan stabilitas terhadap suhu yang tinggi pula.

Faktor-faktor yang perlu diperhatikan dalam pemilihan bahan pengembangan katalis, yaitu bentuk fisik, luas permukaan, porositas, sifat adsorpsi, ketahanan terhadap suhu (Raidah, A. 2012).

Logam Kobalt

Logam kobalt termasuk salah satu logam transisi dengan konfigurasi elektron $3d^7$ yang dapat membentuk kompleks. Istilah logam transisi biasanya digunakan untuk penyebutan logam yang berada pada unsur-unsur blok d, sedangkan untuk unsur-unsur pada blok f disebut logam transisi dalam. Unsur transisi periode keempat umumnya memiliki elektron valensi pada subkulit $3d$ yang belum terisi penuh (kecuali unsur Seng (Zn) pada Golongan IIB). Hal ini menyebabkan unsur transisi periode keempat memiliki beberapa sifat khas yang tidak dimiliki oleh unsur-unsur golongan utama, seperti sifat magnetik, warna ion, aktivitas katalitik, serta kemampuan membentuk senyawa kompleks.

Dalam kondisi sebagai logam murni maupun bentuk oksida logam, logam Co dapat memiliki aktivitas katalitik. Kemampuan katalitik logam kobalt ini dipengaruhi keberadaan elektron pada orbital d yang berbaaur dengan keadaan

elektronik orbital s dan p terdekat yang terdegenerasi. Akibatnya akan timbul keadaan elektronik berenergi rendah dalam jumlah besar dan adanya orbital kosong yang dapat dimanfaatkan sebagai situs katalitik logam. Dalam reaksi katalitik, permukaan logam Co (dalam bentuk logam murni maupun oksidanya) dapat membentuk dan memutuskan ikatan rangkap atau mengatomkan molekul diatomik seperti H₂. Dalam mekanisme reaksi perengkahan hidrokarbon, logam cenderung berperan dalam proses dehidrogenasi dan dapat membantu meningkatkan hasil perengkahan karena mekanisme dehidrogenasi memungkinkan terjadinya pemutusan pada ikatan C-C (Sibarani, K.L. 2012).

Zeolit

Zeolit didefinisikan sebagai mineral kristal alumina silika tetrahidrat berpori yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi, terbentuk oleh tetrahedral silika dan alumina yang saling terhubung oleh atom-atom oksigen sedemikian rupa, sehingga membentuk kerangka tiga dimensi terbuka yang mengandung rongga-rongga. Didalamnya terisi oleh ion-ion logam, biasanya adalah logam-logam alkali atau alkali tanah dan molekul air yang dapat bergerak bebas. (Lestari, Y.D. 2010).

Pada struktur zeolit, empat atom oksigen berkoordinasi dengan semua atom Al membentuk tetrahedral. Si⁴⁺ akan digantikan oleh Al³⁺ sehingga terjadi defisiensi muatan positif. Muatan ini menyebabkan zeolit bermuatan negatif dan selanjutnya akan dinetralkan oleh kation alkali atau alkali tanah, seperti natrium, kalium, magnesium dan kalsium di dalam rongga-rongganya untuk mencapai senyawa yang stabil. Mineral ini memiliki rumus molekul empiris yaitu $Mx/n[(AlO_2)_3(SiO_2)_y]mH_2O$ dimana m adalah kation alkali tanah atau alkali, n adalah valensi logam alkali, dan x, y adalah bilangan tertentu. (Dwijaya, Redy. 2008).

Sifat-Sifat Zeolit

Menurut Dian & Efendy (2010), zeolit memiliki beberapa sifat antara lain:

1) Dehidrasi

Dehidrasi merupakan proses pelepasan molekul-molekul air dari kristal zeolite yang kemudian membentuk rongga dengan

permukaan yang lebih besar. Nilai keaktifan zeolit akan meingkat akibat adanya pelepasan molekul-molekul air dari kerangka zeolit. Jumlah molekul air yang dilepas akan sama dengan jumlah pori-pori yang terbentuk pada saat kristal zeolit dipanaskan.

2) Penukar Ion

Pertukaran ion pada zeolit terjadi pada saat ion-ion asli di dalam zeolit digantikan oleh kation-kation lain seperti Na⁺, K⁺, Mg²⁺ dan Ca²⁺. Ion-ion asli dari zeolit biasanya terdiri dari struktur tiga dimensi yaitu tetrahedral SiO₂ dan AlO₄. Pertukaran ion dengan kation bertujuan untuk menambah muatan listrik yang biasanya dibutuhkan oleh trivalen Al³⁺ dalam posisi tetrahedral.

3) Katalisator

Zeolit juga berperan sebagai katalisator yang baik karena memiliki pori-pori yang besar, permukaan yang luas dan sisi aktif. Zeolit dapat digunakan sebagai katalis karena adanya rongga intrakristalin. Zeolit merupakan kristal yang mudah dibuat dalam jumlah yang besar mengingat zeolit tidak menunjukkan aktifitas katalitik yang bervariasi. Sifat penyaring dari zeolit membuatnya dapat mengontrol molekul yang masuk dan keluar dari sisi aktif. Akibat adanya pengontrolan tersebut zeolit disebut sebagai katalis selektif bentuk.

Zeolit Alam Aktif sebagai Bahan Pengemban

Untuk memperbaiki karakter zeolit alam sehingga dapat digunakan sebagai katalis, adsorben, atau aplikasi lainnya, biasanya dilakukan aktivasi dan modifikasi terlebih dahulu. Selain untuk menghilangkan pengotor-pengotor yang terdapat pada zeolit alam, proses aktivasi zeolit juga ditujukan untuk memodifikasi sifat-sifat dari zeolit, seperti luas permukaan dan keasaman. Luas permukaan dan keasaman yang meningkat akan menyebabkan aktivitas katalitik dari zeolit meningkat. Salah satu kelebihan dari zeolit adalah memiliki luas permukaan dan keasaman yang mudah dimodifikasi (Lestari, Y.D. 2010).

Selain digunakan sebagai katalis dan adsorben, zeolit alam yang telah teraktifasi juga dapat digunakan sebagai bahan pengemban. Bahan pengemban atau penyangga (*support*) mempunyai kegunaan yang beragam dan yang terpenting adalah

memberikan luas permukaan yang tinggi pada katalis sehingga komponen aktif dapat tersebar dengan baik. Fungsi lain dari bahan pengemban adalah untuk meningkatkan kestabilan dari permukaan sehingga dispersi komponen aktif dapat diperhatikan dan menurunkan tingkat *sintering*. Zeolit alam aktif dipilih sebagai bahan pengemban karena zeolit alam aktif memiliki luas permukaan yang besar, harganya tidak mahal, bersifat inert dan struktur kristalnya stabil.

Impregnasi

Impregnasi didefinisikan sebagai salah satu metode dalam preparasi katalis yang paling sederhana dan langsung. Metode impregnasi dilakukan dengan cara mengadsorpsi komponen aktif logam dalam larutan kepada padatan pengemban. Tujuan dari impregnasi adalah untuk memenuhi pori-pori pengemban dengan larutan garam logam dengan konsentrasi tertentu.

Metode impregnasi memiliki beberapa keuntungan, yaitu peralatan yang digunakan relatif sedikit karena tidak ada langkah pencucian dan penyaringan. Selain itu, metode impregnasi juga sangat cocok untuk katalis dengan persen berat komponen aktif katalis yang kecil, yaitu komponen aktif yang termasuk logam mulia semacam platina namun diinginkan terdistribusi sempurna sehingga diperoleh luas permukaan komponen aktif yang besar.

Secara umum, impregnasi dapat dilakukan melalui tahapan-tahapan berikut (Raidah, A. 2012):

- a) Bahan pengemban dicuci kemudian dipanaskan dalam oven untuk menguapkan zat pengotornya. Adanya zat pengotor dapat menghalangi penetrasi larutan impregnan ke dalam bahan pengemban.
- b) Kemudian bahan pengemban katalis dikontakkan dengan larutan garam logam atau impregnan.
- c) Selanjutnya larutan impregnan berlebih dihilangkan.
- d) Kemudian dikeringkan di dalam oven pada suhu 105 – 120 °C.
- e) Setelah kering dikalsinasi pada suhu tertentu untuk menguapkan pelarut dan dekomposisi garam logam.
- f) Pada tahap terakhir seringkali katalis direduksi dengan gas hidrogen.

Tahapan impregnasi yang lebih lengkap dijelaskan pada uraian berikut:

2.3.1. Pengerinan

Pengerinan bertujuan untuk mengkristalkan garam logam pada permukaan pori-pori pengemban. Jika tidak dilakukan dengan benar, akan dihasilkan distribusi konsentrasi yang tidak merata. Pengerinan dilakukan di dalam oven pada suhu 105 – 120 °C.

2.3.2. Kalsinasi

Menurut Firdaus, H.L., dkk. (2013), kalsinasi merupakan proses pemanasan suatu benda hingga temperaturnya tinggi, tetapi masih di bawah titik lebur untuk menghilangkan kandungan yang dapat menguap. Proses aktivasi zeolit melalui kalsinasi menyebabkan pelepasan air sehingga luas permukaan pori-pori zeolit bertambah yang meningkatkan kemampuan untuk adsorpsi. Kalsinasi zeolit dimaksudkan untuk meningkatkan sifat-sifat khusus zeolit dengan cara menghilangkan unsur-unsur pengotor dan menguapkan air yang terperangkap dalam pori kristal zeolit.

2.3.3. Reduksi

Tujuan dari reduksi yaitu untuk menghilangkan oksida yang masih terkandung di dalam logam. Reduksi dilakukan dengan memasukkan katalis dalam reaktor reduksi, dialiri gas hidrogen dengan kecepatan 1 ml/detik secara kontinyu dan dipanaskan pada temperatur 400 °C selama 2 jam (Trisunaryanti, W., dkk. 2005).

2. METODOLOGI PENELITIAN

Waktu dan Tempat Penelitian

Penelitian ini telah dilakukan pada bulan Juli sampai September 2015 di Laboratorium Kimia Organik UPT. Laboratorium Dasar Bersama dan Laboratorium Penelitian Jurusan Kimia Fakultas MIPA Universitas Sriwijaya.

Variabel yang Diteliti

Variabel tetap

Variabel tetap yang digunakan pada penelitian ini adalah jenis zeolit, ukuran zeolit (-100 mesh), suhu kalsinasi setelah impregnasi dan laju alir gas hidrogen pada reduksi.

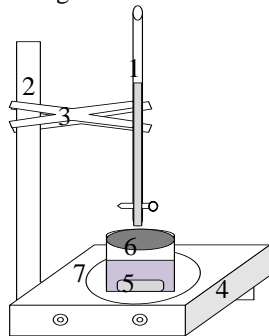
Variabel bebas

Variabel bebas yang digunakan pada penelitian ini adalah rasio reaktan Co/ZAA

pada impregnasi dan suhu reduksi katalis Co/ZAA paska impregnasi.

Peralatan dan Bahan Penelitian
Peralatan untuk Proses Impregnasi Katalis Co/ZAA

Alat-alat yang digunakan untuk impregnasi katalis Co/ZAA dapat dilihat pada skema rangkaian alat di bawah ini.



Gambar 1. Skema Rangkaian Alat untuk Impregnasi Katalis Co/ZAA

Keterangan :

- 1) Buret
- 2) Statif
- 3) Klem pengait
- 4) *Hot plate*
- 5) *Magnetic stirrer*
- 6) Kertas aluminiumfoil
- 7) *Beakerglass*

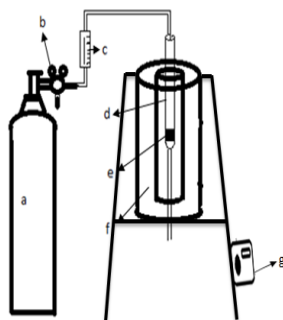
Peralatan untuk Proses Pemanasan dan Kalsinasi Katalis Co/ZAA.

Alat-alat yang digunakan untuk proses pemanasan dan kalsinasi katalis Co/ZAA adalah:

- 1) Oven
- 2) Furnace
- 3) Krus porselen

Peralatan untuk Proses Reduksi Katalis Co/ZAA.

Alat-alat yang digunakan untuk reduksi katalis Co/ZAA dapat dilihat pada skema rangkaian alat di bawah ini.



Gambar 2. Skema Rangkaian Alat untuk Reduksi Katalis Co/ZAA

Keterangan:

- a) Tabung gas hidrogen
- b) Regulator gas
- c) Flowmeter
- d) Reaktor reduksi
- e) Katalis
- f) *Furnace*
- g) Termokopel

Peralatan untuk Analisa

Alat-alat yang digunakan untuk analisa adalah:

- 1) Desikator
- 2) Cawan krus
- 3) Neraca analitis
- 4) *Surface area analyser*

Bahan untuk Penelitian

Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah:

- 1) Zeolit alam aktif
- 2) $\text{CoCl}_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$
- 3) Aquadest
- 4) Amonia cair
- 5) Gas hidrogen

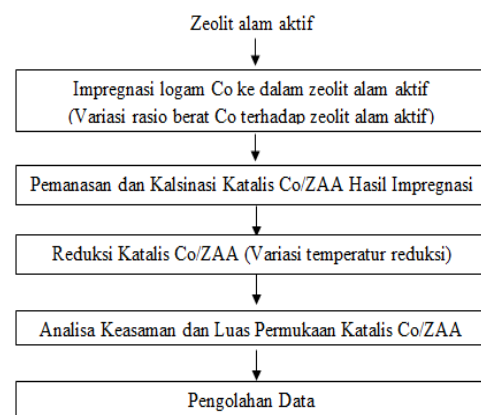
Bahan untuk Analisa

Bahan yang digunakan pada analisa ini adalah:

- 1) Amonia
- 2) Piridin
- 3) Gas nitrogen

Diagram Alur Penelitian

Pelaksanaan penelitian ini terdiri dari tahapan-tahapan yang diawali dengan proses impregnasi logam Co ke dalam zeolit alam aktif, pemanasan hasil impregnasi Co/ZAA, kalsinasi Co/ZAA, reduksi katalis Co/ZAA, analisa keasaman dan luas permukaan katalis Co/ZAA dan pengolahan data. Diagram alur penelitian dapat dilihat pada gambar 3 berikut.



Gambar 3. Diagram Alur Penelitian

Prosedur Penelitian

Impregnasi Katalis

- 1) Sebanyak 20 gram zeolit alam aktif direndam dalam larutan $\text{CoCl}_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ (yang divariasikan rasio beratnya) selama 24 jam, sambil diaduk menggunakan *magnetic stirrer*. Variasi rasio berat Co/ZAA yang digunakan adalah 0,1; 0,15; 0,2; 0,25 dan 0,3 gram per gram.
- 2) Selama 4 jam pertama, larutan Co/ZAA ditetesi amonia cair setetes demi setetes melalui buret.
- 3) Setelah itu, larutan Co/ZAA dikeringkan menggunakan oven pada suhu 130°C selama 3 jam sampai menjadi pasta.
- 4) Selanjutnya, Co/ZAA yang telah menjadi pasta dikalsinasi menggunakan *furnace* pada suhu 550°C selama 5 jam hingga menjadi padatan.

Reduksi Katalis

- 1) Reaktor reduksi disiapkan dan sebanyak 2 gram padatan Co/ZAA hasil impregnasi dengan rasio berat tertentu dimasukkan ke dalam reaktor reduksi.
- 2) Setelah itu, gas H_2 dialirkan ke reaktor reduksi dengan laju alir 1 ml/detik.
- 3) Proses reduksi katalis Co/ZAA dilakukan pada suhu 400°C selama 2 jam.
- 4) Produk katalis Co/ZAA hasil reduksi dengan variasi rasio berat, kemudian dianalisa tingkat keasaman dan luas permukaannya. Keasaman katalis Co/ZAA dianalisa dengan cara adsorpsi gas amoniadan piridin, dan luas permukaan katalis Co/ZAA dianalisa menggunakan *Surface Area Analyser*.
- 5) Setelah dilakukan analisa terhadap katalis Co/ZAA dengan variasi rasio berat, selanjutnya katalis Co/ZAA dengan hasil terbaik direduksi (yang divariasikan suhu reduksinya). Variasi suhu reduksi yang digunakan adalah 250°C ; 300°C ; 350°C ; 400°C dan 450°C .
- 6) Produk katalis Co/ZAA dengan variasi suhu reduksi, kemudian dianalisa tingkat keasaman dan luas permukaannya. Keasaman katalis Co/ZAA dianalisa dengan cara adsorpsi gas amoniadan piridin, dan luas permukaan katalis Co/ZAA dianalisa menggunakan *Surface Area Analyser*.

Prosedur Analisa

Uji Keasaman dengan Adsorpsi Amonia dan Piridin

- 1) Katalis Co/ZAA dipanaskan di dalam oven pada suhu 110°C selama 24 jam.
- 2) Setelah itu, katalis Co/ZAA didinginkan di dalam desikator.
- 3) Setelah mencapai suhu kamar, katalis Co/ZAA ditimbang seberat 1 gr. Kemudian dimasukkan ke dalam desikator bersama dengan adsorbat berupa amonia atau piridin sebanyak 5 ml selama 24 jam.
- 4) Setelah itu, katalis Co/ZAA dikeluarkan dari desikator lalu ditimbang kembali, selisih dari berat Co/ZAA sesudah dan sebelum masuk desikator merupakan jumlah amonia atau piridin yang terserap.
- 5) Kemudian dihitung keasaman katalis Co/ZAA dengan menggunakan persamaan sebagai berikut:

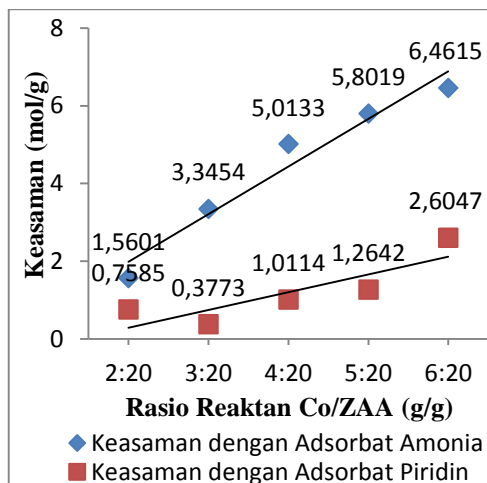
$$\text{Keasaman dengan adsorbat amonia} = \frac{m \text{ amonia} \times 1000}{m \text{ Co/ZAA} \times \text{BM amonia}}$$

$$\text{Keasaman dengan adsorbat piridin} = \frac{m \text{ piridin} \times 1000}{m \text{ Co/ZAA} \times \text{BM piridin}}$$

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

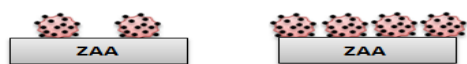
Pengaruh Rasio Reaktan pada Impregnasi terhadap Keasaman Katalis Kobalt/Zeolit Alam Aktif

Keasaman katalis adalah jumlah mol asam per satuan berat atau luas permukaan. Uji keasaman ini dilakukan untuk mengetahui banyaknya situs asam yang terdapat di dalam katalis tanpa mengetahui seberapa kuat situs asamnya. Jumlah situs asam dengan amonia sebagai basa adsorbat merupakan jumlah situs asam total dengan asumsi bahwa ukuran molekul amoniayang kecil memungkinkannya masuk sampai ke dalam pori-pori katalis Co/ZAA. Jumlah situs asam dengan piridin sebagai basa adsorbatnya merupakan jumlah situs asam permukaan dengan asumsi bahwa ukuran molekul piridin yang besar membuatnya hanya dapat terikat pada permukaan katalis Co/ZAA. Hasil penentuan jumlah situs asam pada masing-masing rasio reaktan katalis Co/ZAA disajikan pada gambar 4.



Gambar 4. Pengaruh Rasio Reaktan Co/ZAA pada Impregnasi terhadap Keasaman Katalis Co/ZAA (20 gram ZAA, laju alir gas H₂ 1 ml/det, suhu reduksi katalis 400 °C)

Pada gambar 4. terlihat bahwa rasio reaktan Co/ZAA berpengaruh terhadap keasaman katalis Co/ZAA. Dapat dilihat bahwa semakin besar rasio kobalt dalam zeolit alam aktif maka semakin besar pula keasamannya. Hal ini disebabkan penambahan logam Co menjadikan bertambahnya situs aktif pada zeolit alam aktif sehingga memungkinkannya untuk dapat mengadsorpsi amonia maupun piridin yang lebih banyak. Untuk lebih jelasnya, hal ini dapat dilihat pada gambar 5 dan 6 berikut.



Gambar 5. Bertambahnya Amonia yang Terserap akibat Penambahan Jumlah Co

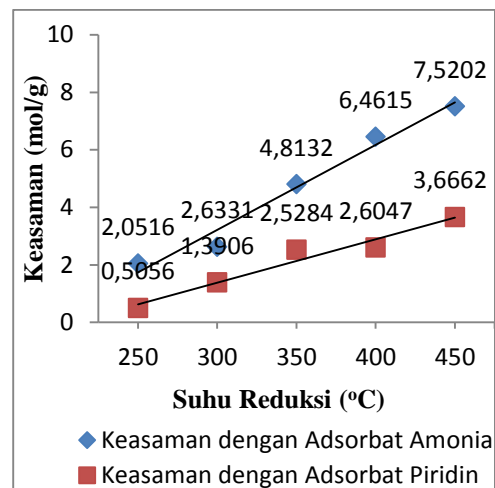


Gambar 6. Bertambahnya Piridin yang Terserap akibat Penambahan Jumlah Co

Pengaruh Suhu Reduksi Katalis terhadap Keasaman Katalis Kobalt/Zeolit Alam Aktif

Berdasarkan gambar 4, katalis Co/ZAA dengan rasio reaktan 6:20 memiliki nilai keasaman tertinggi. Katalis ini digunakan untuk meneliti pengaruh suhu reduksi

terhadap keasaman katalis Co/ZAA. Data hasil keasaman katalis Co/ZAA pada masing-masing suhu reduksi dapat dilihat pada gambar 7. berikut.



Gambar 7. Pengaruh Suhu Reduksi terhadap Keasaman Katalis Co/Zeolit Alam Aktif (20 gram ZAA, laju alir gas H₂ 1 ml/det, rasio reaktan katalis Co/ZAA 6:20)

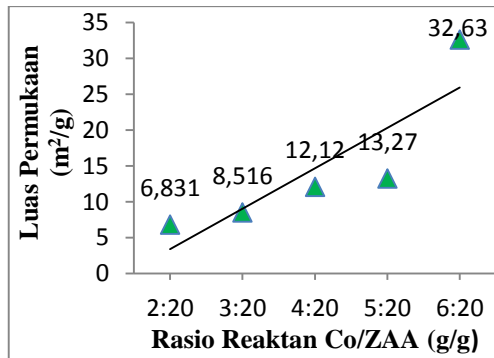
Pada grafik 7. terlihat bahwa semakin tinggi suhu reduksi maka semakin tinggi pula keasamannya. Hal ini disebabkan karena pada suhu reduksi yang tinggi, oksigen pada logam Co terlepas dari katalis Co/ZAA. Akibatnya, logam Co pada katalis Co/ZAA yang awalnya berikatan dengan oksigen menjadi logam murni sehingga logam Co pada katalis Co/ZAA lebih reaktif.

Pengaruh Jumlah Rasio Reaktan pada Impregnasi terhadap Luas Permukaan Katalis Kobalt/Zeolit Alam Aktif

Dalam proses reaksi katalis heterogen, luas permukaan kontak menjadi faktor yang sangat penting. Luas permukaan katalis yang besar akan memberikan luas kontak yang besar antara molekul reaktan dengan katalis. Besarnya kontak tersebut secara langsung akan mempengaruhi proses katalisis secara keseluruhan.

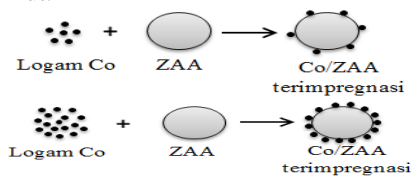
Molekul reaktan akan bergerak bebas sebelum mengalami adsorpsi pada permukaan katalis kemudian teraktivasi dan bereaksi menghasilkan produk. Semakin banyak molekul reaktan yang teradsorpsi dan teraktivasi, maka semakin tinggi juga peluang terjadinya reaksi katalisis

menghasilkan produk. Untuk melihat karakter luas permukaan kontak katalis dengan reaktan maka dilakukan pengukuran luas permukaan spesifik padatan katalis dengan metode BET (*Brunauer-Emmet-Teller*) menggunakan nitrogen sebagai adsorbat. Hasil penentuan luas permukaan pada masing-masing rasio reaktan katalis disajikan pada gambar 8.



Gambar 8. Pengaruh Rasio Reaktan pada Impregnasi terhadap Luas Permukaan Katalis Co/ZAA (suhu reduksi 400°C, 20 gram katalis Co/ZAA)

Pada gambar 8, terlihat bahwa luas permukaan katalis Co/ZAA mengalami kenaikan seiring dengan kenaikan rasio katalis Co/ZAA. Hal ini disebabkan karena penambahan jumlah logam Co pada zeolit alam aktif melalui impregnasi mengakibatkan bertambahnya jumlah lapisan tunggal pada permukaan zeolit alam aktif. Bertambahnya lapisan tunggal ini menyebabkan luas permukaan spesifik katalis Co/ZAA menjadi besar. Untuk lebih jelasnya, hal ini dapat dilihat pada gambar 6 berikut.



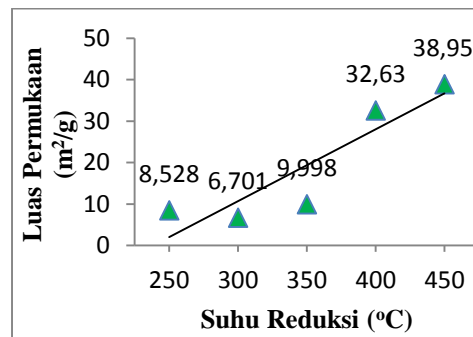
Gambar 9. Kenaikan Luas Permukaan Katalis Co/ZAA akibat Penambahan Jumlah Logam Co

Gambar di atas menunjukkan bahwa adanya logam Co yang menempel pada permukaan zeolit alam aktif dapat memberikan lapisan aktif baru dengan luas permukaan yang baru pula. Oleh karena itu,

dengan bertambahnya logam Co yang menempel pada permukaan zeolit alam aktif maka bertambah pula luas permukaannya.

Pengaruh Suhu Reduksi terhadap Luas Permukaan Katalis Kobalt/Zeolit Alam Aktif

Katalis Co/ZAA dengan rasio reaktan 6:20 digunakan untuk meneliti pengaruh suhu reduksi terhadap luas permukaan pori kobalt/zeolit alam aktif. Data hasil luas permukaan katalis kobalt/zeolit alam aktif pada masing-masing suhu reduksi dapat dilihat pada gambar 10, berikut.



Gambar 10. Pengaruh Suhu Reduksi terhadap Luas Permukaan Katalis Co/ZAA (rasio reaktan katalis 6:20, 20 gram katalis Co/ZAA)

Pada gambar 10, terlihat bahwa luas permukaan katalis Co/ZAA mengalami kenaikan seiring dengan kenaikan suhu reduksi. Hal ini disebabkan karena kenaikan suhu reduksi akan membantu terbukanya pori-pori baru pada katalis Co/ZAA. Selain itu, kenaikan suhu reduksi juga menyebabkan oksigen pada logam Co terlepas dari katalis Co/ZAA. Akibatnya, celah-celah dari katalis Co/ZAA yang ditinggalkan oleh oksigen tersebut menjadikan luas permukaan katalis Co/ZAA semakin bertambah.

4. KESIMPULAN

1. Semakin besar rasio kobalt/zeolit alam aktif pada impregnasi maka semakin besar pula keasaman dan luas permukaan katalis Co/ZAA dengan kenaikan secara linier.
2. Semakin tinggi suhu reduksi katalis yang digunakan maka semakin tinggi

pula keasaman dan luas permukaan katalis Co/ZAA dengan kenaikan secara linier.

3. Keasaman katalis terbesar pada penelitian ini adalah pada rasio reaktan Co/ZAA 6:20 dan pada suhu reduksi 450 °C yaitu masing-masing 6,4615 mol/g dan 7,5202 mol/g (keasaman dengan adsorbat amonia), 2,6047 mol/g dan 3,6662 mol/g (keasaman dengan adsorbat piridin). Luas permukaan katalis terbesar pada penelitian ini adalah pada rasio reaktan Co/ZAA 6:20 yaitu 32,63 m²/g dan pada suhu reduksi 450 °C yaitu 38,95 m²/g.

DAFTAR PUSTAKA

- Anwar, C dan Rahman, M. (2011). *Oksidasi Katalitik Karbon Monoksida pada Katalis Pt-Zeolit Alam Berpromotor Serium*. Jurnal Teknologi Industri. Vol. 45, No. 2, pp 159-164.
- Aziz, M.H., dkk. (2010). *Bahan Galian Industri Zeolit*. Skripsi. Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Mataram.
- Dian, K.R., & Fendy, A.L. (2010). *Optimasi Aktivasi Zeolit Alam untuk Humidifikasi*. Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Diponegoro. Semarang.
- Dwijaya dan Redy. (2008). *Modifikasi Zeolit*. Skripsi. Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Indonesia. Jakarta.
- Firdaus, H.L., Wicaksono, A.R & Widayat. (2013). *Pembuatan Katalis H-Zeolit dengan Impregnasi KI/KIO₃ dan Uji Kinerja Katalis untuk Produksi Biodiesel*. Jurnal Teknologi Kimia dan Industri. Vol 2, No. 2, pp 148-154.
- Indah, Ar. (2009). *Unsur Kobalt*. Skripsi. Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Brawijaya. Malang.
- Lestari, Y.D. (2010). *Kajian Modifikasi dan Karakterisasi Zeolit Alam dari Berbagai Negara*. Skripsi. Jurusan Pendidikan Kimia. Universitas Negeri Yogyakarta.
- Raidah, A. 2012. *Pengaruh Garam Prekursor Terhadap Aktivitas Katalis CuO/γ-Al₂O₃ yang digunakan dalam Reaksi Hidrogenasi Minyak Jarak*. Skripsi. Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik. Universitas Indonesia. Depok.
- Sibarani, K.L. (2012). *Preparasi, Karakterisasi dan Uji Aktifitas Katalis Ni-Cr/Zeolit Alam pada Proses Perengkahan Limbah Plastik Menjadi Fraksi Bensin*. Skripsi. Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Indonesia. Depok.
- Thaib, Amril. (1995). *Preparasi dengan Metode Amoniak dan Karakterisasi Katalis Co, Co-Cu, Ni, Ni-Cu, Ni-Co/Yal₂O₃ untuk Proses Oksidasi Parsial*. Tesis. Universitas Indonesia. Depok.
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E & Sudiono, S. (2005). *Preparasi, Modifikasi Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam*. Jurnal Teknologi Industri. Vol. 10, No. 4, pp 269-282.
- Wahyudi, I. (2012). *Hydrocracking Minyak Jarak Pagar dengan Katalis Ni-Zeolit Alam Aktif Sebelum dan Sesudah Regenerasi*. Skripsi. Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Sriwijaya. Palembang.
- Witanto, E., Trisunaryanti, W & Triyono. (2010). *Preparasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam Aktif*. Skripsi. Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Gajah Mada. Yogyakarta.