

DOI: doi.org/10.21009/03.1301.FA30

AKTIVASI ZEOLIT ALAM DAN SINTESIS KATALIS ZAA/Ni MENGUNAKAN METODE IMPREGNASI BASAH

Elsa Regita Hutami ^{1, a)}, Esmar Budi ^{1, b)}, Saddam Husin ^{2, a)}, Dita Adi Saputra ^{2, b)},
Muhammad Dikdik Gumelar ^{2, c)}

¹Program Studi Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Jakarta, Kampus A Jl. Rawamangun Muka, Jakarta Timur 13220, Indonesia

²Pusat Riset Konversi dan Konservasi Energi, Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN), Kawasan Puspitek, Tangerang Selatan, Banten 15314, Indonesia

^{1a)}elsaregitahtutam@gmail.com; ^{1b)}esmarbudi@unj.ac.id; ^{2a)}sadd001@brin.go.id;
^{2b)}dita001@brin.go.id; ^{2c)}muha086@brin.go.id;

Abstrak

Zeolit telah banyak digunakan sebagai katalis heterogen dalam reaksi *catalytic cracking*. Peran zeolit sebagai katalis bergantung pada jumlah dan situs asam yang terdapat pada permukaan katalis. Pengembanan logam nikel pada pori-pori zeolit dapat meningkatkan luas permukaan katalis, yang memungkinkan lebih banyak molekul reaktan untuk berinteraksi dengan situs aktif, sehingga meningkatkan selektivitas produk. Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari proses aktivasi zeolit alam dan pembuatan katalis berbahan baku zeolit alam aktif terimpregnasi nikel yang terdiri dari karakteristik BET dan XRF. Zeolit yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam dari Sukabumi. Variasi katalis yang digunakan yaitu zeolit alam teraktivasi H_2SO_4 (ZAA) dan ZAA/Ni dengan konsentrasi nikel sebesar 2%. Jenis nikel yang digunakan yaitu $NiSO_4$ MHP (*Mixed Hydroxide Precipitate*) 2%. Hasil penelitian menunjukkan peningkatan luas permukaan zeolit alam dari $61.59 m^2/g$ menjadi $91.72 m^2/g$. Aktivasi zeolit menggunakan asam sulfat berhasil mengurangi unsur pengotor yang terkandung dalam zeolit alam seperti Na, K, Cl, Mg dan Fe. Nikel yang berhasil terimpregnasi ke dalam pori-pori zeolit sebesar 0.30% pada katalis ZAA/Ni.

Keywords: Katalis, Zeolit, Nikel, Impregnasi Basah

Abstract

Zeolite has been widely used as a heterogeneous catalyst in *catalytic cracking* reactions. The role of zeolite as a catalyst depends on the amount and site of acid present on the surface of the catalyst. The imposition of nickel metal on the pores of zeolite can increase the surface area of the catalyst, which allows more reactant molecules to interact with the active site, thereby increasing the selectivity of the product. This study aims to study the process of natural zeolite activation and the manufacture of catalysts made from nickel-impregnation active natural zeolite consisting of BET and XRF characteristics. The zeolite used in this study is natural zeolite from Sukabumi. The catalyst variations used are activated natural zeolite with H_2SO_4 (ZAA) and ZAA/Ni with a nickel concentration of 2%. The type of nickel used is $NiSO_4$ MHP (*Mixed Hydroxide Precipitate*) 2%. The results of the study showed an increase in the surface area of natural zeolite from $61.59 m^2/g$ to $91.72 m^2/g$. Activation of zeolite using sulfuric acid has succeeded in reducing the impurity elements contained in natural zeolites such as Na, K, Cl, Mg and Fe. Nickel that has been successfully impregnated into zeolite pores by 0.30% in the ZAA/Ni catalyst.

Keywords: Catalyst, Zeolite, Nickel, Wet Impregnation

PENDAHULUAN

Indonesia saat ini sedang mengembangkan inovasi penelitian yang memanfaatkan sumber daya alam yang melimpah untuk memberikan kontribusi penting terhadap pengembangan material aplikatif sebagai upaya dalam memajukan pengetahuan ilmiah dan teknologi (Nizar dkk., 2019). Salah satu mineral alam yang sangat besar potensinya adalah zeolit. Zeolit tersebar di beberapa pulau besar di Indonesia, seperti pada pulau Sumatra, Jawa, Kalimantan dan Sulawesi (Oktavia dkk., 2013). Karakteristik zeolit yang unik antara lain sangat stabil dengan kemampuan adsorpsi yang sangat tinggi dan selektif serta mempunyai struktur pori (mikroporus) aktif yang banyak sehingga memiliki luas permukaan spesifik yang tinggi (Apyana dkk., 2016). Luas permukaan yang besar ini sangat menguntungkan dalam pemanfaatan zeolit baik sebagai adsorben ataupun sebagai katalis heterogen (Lestari., 2010).

Namun karena zeolit berasal dari alam hal ini menyebabkan banyaknya unsur pengotor yang terkandung di dalam zeolit seperti seperti Na, K, Ca, Mg dan Fe serta kristalinitasnya kurang baik. Keberadaan pengotor-pengotor tersebut dapat mengurangi aktivitas dari zeolit (Lestari, 2010). Untuk meningkatkan kualitas zeolit alam perlu dilakukan proses aktivasi yang bertujuan memperbesar volume pori-pori dari zeolit alam (Widianti, 2022) dan menghilangkan unsur pengotor yang terkandung pada zeolit. Menurut penelitian dari Wirawan dkk (2011), aktivasi zeolit menggunakan H_2SO_4 lebih efektif daripada HCl dikarenakan berhasil meningkatkan rasio Si/Al pada zeolit. Rasio Si/Al sangat berpengaruh pada karakter struktural seperti kristalinitas, diameter pori, dan tingkat keasaman katalis. Penambahan logam prekursor seperti Ni di dalam zeolit mampu menambahkan aktivitas zeolit sebagai katalis yaitu melalui proses impregnasi (Rahayu dkk, 2013). Metode penyisipan komponen senyawa aktif ke dalam rongga penyangga yang optimal yaitu metode impregnasi basah.

Metode impregnasi basah memiliki keuntungan karena terjadi kontak langsung antara logam yang diimbakan dengan material pengembannya secara lebih efektif. Untuk mencapai adsorpsi, impregnasi basah dilakukan dengan larutan yang lebih banyak dari bahan pengemban, konsentrasi prekursor yang rendah, dan pH yang telah ditentukan (Munnik dkk., 2015). Menurut penelitian dari Sihombing dkk, (2022) Secara keseluruhan, katalis Ni/SNZ-7 menunjukkan karakteristik terbaik dalam hal luas permukaan spesifik tertinggi ($92 \text{ m}^2/\text{g}$), pengotor paling sedikit (3%) dan rasio Si/Al tertinggi (13,79).

Menurut penelitian dari Retnaningsih (2020) katalis zeolit terimpregnasi nikel dapat digunakan untuk proses *catalytic cracking* minyak jarak pagar menjadi senyawa gasoline, kerosin dan diesel. Pada katalis NiMo(7:3)/ZH mampu memberikan selektivitas produk hidrokarbon sebesar 66,81%, hal tersebut dapat dipengaruhi oleh besarnya luas permukaan katalis NiMo (7:3)/ZH yaitu $24,62 \text{ m}^2/\text{g}$ dan nilai keasaman katalis yaitu 1,9517 mmol/g. Penelitian dari Aziz dkk (2021) katalis zeolit terimpregnasi nikel berhasil mengkonversi minyak jelantah menjadi produk hidrokarbon dengan selektivitas tertinggi pada katalis NiO/Zeolit (1%) yaitu 48.55%. Katalis NiO/Zeolit (1%) mempunyai luas permukaan sebesar 49.41%. Luas permukaan yang besar ini dapat menyediakan banyak situs aktif yaitu situs asam Bronsted dan situs asam Lewis.

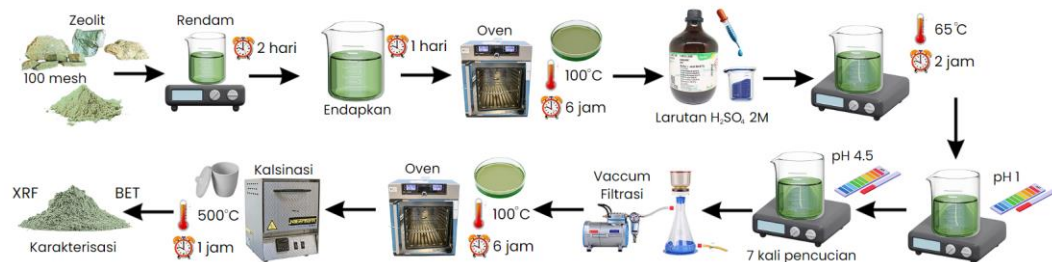
Pada penelitian ini dilakukan aktivasi zeolit alam dan sintesis katalis zeolit alam aktif dengan penyisipan logam nikel menggunakan metode impregnasi basah. Zeolit alam berasal dari Sukabumi diaktivasi menggunakan H_2SO_4 2M, zeolit alam aktif diberi nama ZAA lalu dilakukan karakterisasi menggunakan XRF dan BET. Selanjutnya ZAA disintesis dengan prekursor logam nikel jenis $NiSO_4$ MHP (*Mixed Hydroxide Precipitate*) 2% menggunakan metode impregnasi basah. Lalu katalis ZAA/Ni dikarakterisasi menggunakan XRF dan BET.

METODOLOGI PENELITIAN

Material

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam dari Sukabumi, H_2SO_4 98% untuk pengaktifan zeolit alam, aquades dan $NiSO_4$ MHP (*Mixed Hydroxide Precipitate*). Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu oven *mement*, neraca digital, *furnace nabertherm*, *hot plate*, refluks, *vaccum pump filtration*, perangkat laptop lenovo ideapad dengan *processor* AMD ryzen 3 4300U dan alat karakterisasi XRF (*X-ray diffraction*) dan BET (*Brunauer–Emmett–Teller*).

Aktivasi Zeolit Alam



Gambar 1. Aktivasi Zeolit

Aktivasi zeolit alam dilakukan dengan fisika-kimia dengan pemanasan dan penambahan H_2SO_4 2M. Zeolit alam sebanyak 170 gr di rendam dengan aquades hingga 2 hari sambil diaduk menggunakan *magnetic stirrer*. Zeolit diendapkan dengan gravitasi selama 24 jam. Endapan zeolit dikeringkan pada oven suhu $100^\circ C$ sampai 6 jam. Zeolit 100 gr diaktivasi menggunakan H_2SO_4 2M dengan suhu $65^\circ C$ sampai 2 jam. Zeolit dicuci dengan aquades hingga pH netral (4-5) untuk menghilangkan sisa kandungan asam. Lalu zeolit dikeringkan dengan oven suhu $100^\circ C$ sampai 6 jam. Kalsinasi dengan suhu $500^\circ C$ menggunakan aliran gas argon sampai 1 jam. Zeolit alam aktif diberi nama ZAA lalu dikarakterisasi menggunakan XRF untuk mengetahui presentase unsur yang terkandung dalam zeolit dan BET untuk mengetahui luas permukaan sebelum dan sesudah aktivasi.

Sintesis Katalis



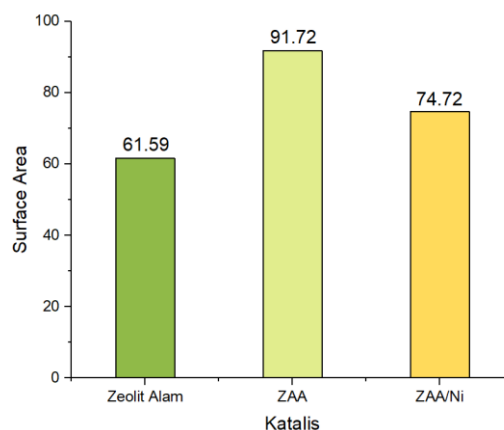
Gambar 2. Sintesis katalis

Sintesis katalis dilakukan menggunakan metode impregnasi basah dengan penyisipan logam nikel dengan variasi $NiSO_4$ MHP (*Mixed Hydroxide Precipitate*) 2%. Zeolit sebanyak 19 gr dilarutkan dengan 20mL aquades dan 0.38 gr $NiSO_4$ MHP dilarutkan dengan 10mL aquades. Refluks dengan suhu $65^\circ C$ sampai 5 jam. Hasil dikeringkan dengan oven suhu $115^\circ C$ selama 12 jam untuk menghilangkan sisa air. Selanjutnya katalis dikalsinasi dengan suhu $500^\circ C$ menggunakan aliran gas argon sampai 1 jam. Katalis ZAA/Ni dikarakterisasi menggunakan BET untuk mengetahui luas permukaan setelah impregnasi nikel dan XRF untuk mengetahui presentase nikel yang berhasil terimpregnasi.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi BET

Pengujian BET (*Brunauer-Emmett-Teller*) merupakan metode karakterisasi yang digunakan untuk menentukan luas permukaan dan pori-pori dari suatu adsorben atau material adsorpsi. Zeolit mempunyai struktur yang khas karena hampir sebagian besar merupakan kanal dan pori, hal ini menyebabkan zeolit memiliki luas permukaan yang besar. Aktivasi zeolit dilakukan secara fisika dan kimia. Aktivasi secara fisika dilakukan dengan pemanasan dan pengecilan ukuran sample dan aktivasi secara kimia yaitu dengan penambahan asam. Aktivasi menggunakan H_2SO_4 2M mengakibatkan terjadinya pertukaran kation dengan H^+ .

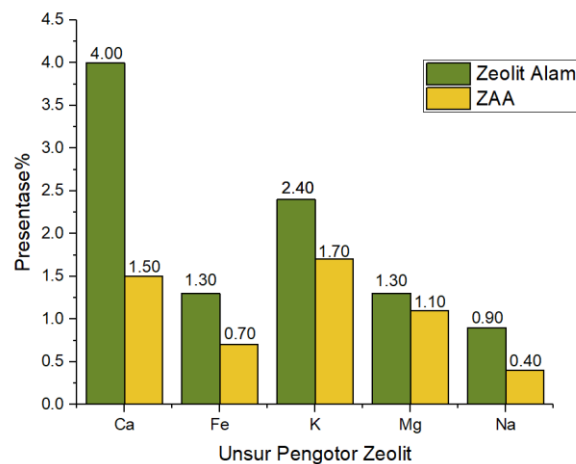


Gambar 3. Surface area BET

Hasil uji luas permukaan dilakukan dengan karakterisasi BET dapat dilihat pada Gambar 3. Zeolit alam sebelum aktivasi mempunyai luas permukaan sebesar 61.59 m²/g. Setelah diberikan perlakuan dengan asam luas permukaan zeolit mengalami peningkatan sebesar 91.72 m²/g. Hasil aktivasi menggunakan H_2SO_4 lebih besar dibandingkan dengan penelitian Atikah, 2017 yang menggunakan HCl yaitu 44.05 m²/g. Peningkatan ini disebabkan karena terbukanya pori zeolit yang semula ditutupi oleh unsur pengotor. Unsur pengotor berupa kation tersebut akan bereaksi dengan H_2SO_4 . Luas permukaan spesifik zeolit meningkat karena perlakuan asam dapat melarutkan pengotor baik organik maupun anorganik yang bersifat menutupi pori, sehingga pori-pori zeolit menjadi terbuka dan permukaannya menjadi lebih luas. ZAA/Ni menghasilkan luas permukaan pori-pori sebesar 74.72 m²/g. Luas permukaan ZAA/Ni lebih kecil dibandingkan dengan luas permukaan ZAA, hal ini membuktikan bahwa nikel telah berhasil terimpregnasi ke dalam pori-pori zeolit.

Karakterisasi XRF

Karakterisasi XRF (*X-ray diffraction*) bertujuan untuk mengetahui komposisi kimia dan kandungan unsur yang terdapat dalam zeolit alam, serta untuk menentukan perubahan komposisi kimia yang terjadi setelah proses aktivasi. Zeolit merupakan mineral yang berasal dari alam, hal ini menyebabkan terdapat banyaknya unsur pengotor yang terkandung di dalam zeolit seperti Na, K, Ca, Mg dan Fe. Keberadaan pengotor tersebut dapat mengurangi aktivitas zeolit sebagai katalis, maka dari itu diperlukan proses aktivasi zeolit. Aktivasi zeolit alam dilakukan secara fisika-kimia dengan pemanasan dan penambahan H_2SO_4 2M.



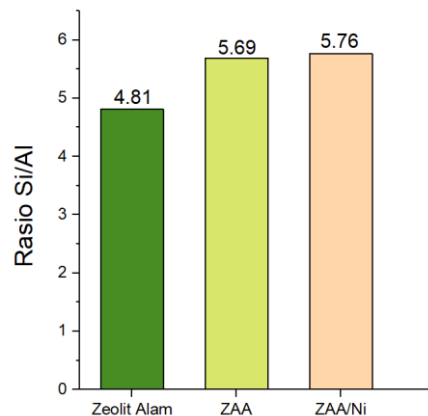
Gambar 4. Presentase unsur pengotor zeolit

Proses aktivasi zeolite menggunakan H_2SO_4 2M berhasil menurunkan unsur pengotor yang terkandung dalam zeolite karena terjadi pertukaran ion H^+ dari larutan H_2SO_4 dengan kation bebas pada zeolit. Ion H^+ akan diserang oleh atom oksigen yang terikat pada Si dan Al. Setiap pergantian ion silika dan alumina memerlukan 1 ion logam alkali atau alkali tanah seperti Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Ba^{2+} , Sr^{2+} untuk menetralkan muatan listriknya (Kosegeran dkk., 2021). Pertukaran ion H^+ dengan kation bebas pada zeolit akan membentuk situs asam Bronsted. Situs asam Bronsted pada katalis berperan dalam proses hidrogenasi atau pemutusan ikatan rangkap dari reaktan.

Tabel 1. Hasil XRF unsur Si, Al dan Ni

Katalis	Si	Al	Ni
Zeolit Alam	33.70	7.00	-
ZAA	37.00	6.50	-
ZAA/Ni	36.90	6.40	0.30

Hasil XRF pada tabel 1 menunjukkan bahwa unsur alumina dan silika merupakan komponen penyusun zeolit yang utama. Kandungan silika meningkat setelah perlakuan asam dari 33.70% menjadi 37%. Aktivasi zeolit menggunakan H_2SO_4 2M menyebabkan zeolit mengalami dealuminasi. Dealuminasi merupakan proses perusakan struktur kerangka zeolit dimana terjadi pemutusan Al dalam kerangka menjadi Al di luar kerangka. Tujuan dealuminasi untuk mengoptimalkan kandungan Al dalam zeolit, sehingga zeolit menjadi lebih stabil pada temperatur tinggi. Presentase nikel yang berhasil terimpregnasi ke dalam pori-pori zeolit yaitu 0.30% hal ini dibuktikan dengan menurunnya nilai luas permukaan dari 91.72 m^2/g menjadi 74.72 m^2/g .



Gambar 5. Rasio Si/Al zeolit

Berdasarkan hasil uji XRF rasio Si/Al pada Gambar 5. Perubahan presentase unsur Si dan Al akan menyebabkan perubahan pada rasio Si/Al. Rasio Si/Al zeolit sebelum aktivasi yaitu 4.81%, setelah aktivasi menjadi 5.69%. ZAA/Ni mempunyai rasio Si/Al tertinggi yaitu 5.76% hal ini dikarenakan bertambahnya situs aktif pada zeolit seperti asam Lewis dan asam Bronsted. Menurut penelitian Dewi 2020, zeolit mordenit yang mempunyai perbandingan Si/Al = 5 mempunyai sifat sangat stabil. Perubahan rasio Si/Al pada zeolit akan mempengaruhi sifat dari material tersebut. Peningkatan rasio Si/Al diikuti dengan peningkatan kemampuan adsorpsi karena penurunan Al pada situs aktif Si-O-Al menyebabkan transformasi situs aktif menjadi Si-O-Si sehingga zeolit cenderung bersifat hidrofobik (Sofith dkk., 2020).

KESIMPULAN

Aktivasi zeolit dilakukan secara fisika-kimia, yaitu dengan pemanasan dan penambahan H_2SO_4 2M. Penambahan asam berhasil meningkatkan luas permukaan zeolit dari 61.59 m^2/g menjadi 91.72 m^2/g . Unsur pengotor yang terdapat pada zeolit alam berhasil turun, hal ini membuktikan bahwa terjadi pertukaran ion silika dan alumina yang memerlukan 1 ion logam alkali atau alkali tanah seperti Na, Mg, Ca, K dan Fe. Meningkatnya rasio Si/Al dari 4.81% menjadi 5.76%. Rasio Si/Al yang besar pada zeolit berfungsi untuk meningkatkan stabilitas termal, kekuatan asam, dan konversi hidrokarbon yang berpengaruh dalam proses *catalytic cracking* menggunakan katalis. Presentase nikel yang berhasil terimpregnasi ke dalam pori-pori zeolit yaitu 0.30% hal ini dibuktikan dengan menurunnya nilai luas permukaan dari 91.72 m^2/g menjadi 74.72 m^2/g .

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Dr. Esmar Budi, M.T, Saddam Husin S.Si., M.T, Dita Adi Saputra, S.Si., M.Sc dan Muhammad Dikdik Gumelar, S.T., M.Si yang telah membimbing dan memberi arahan dalam penelitian ini, serta fasilitas pendukung dari Laboratorium Pusat Riset Material Maju dan Laboratorium Konversi dan Konservasi Energi, Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN). Semoga jurnal penelitian ini dapat berguna dan bermanfaat bagi pembaca.

DAFTAR PUSTAKA

- Apryana, A., Bahri, S., & Helwani, Z. (2016). *Penggunaan Ni/NZA Sebagai Katalis Pada Proses Hidrodeoksigenasi Pirolisis Kulit Pinus (Pinus Merkussi Menjadi Bio-Oil)* (Doctoral dissertation, Riau University).
- Atikah, W. S. (2017). Karakterisasi zeolit alam gunung kidul teraktivasi sebagai media adsorben pewarna tekstil. *Arena Tekstil*, 32(1).
- Aziz, I., Sugita, P., Darmawan, N., & Dwiatmoko, A. A. (2023). Effect of desilication process on natural zeolite as Ni catalyst support on hydrodeoxygenation of palm fatty acid distillate (PFAD) into green diesel. *South African Journal of Chemical Engineering*, 45(1), 328-338.
- Lestari, D. Y. (2010, October). Kajian modifikasi dan karakterisasi zeolit alam dari berbagai negara. In *Prosiding Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan Kimia* (Vol. 30, No. 1, pp. 1-6).
- Munnik, P., De Jongh, P. E., & De Jong, K. P. (2015). Recent developments in the synthesis of supported catalysts. *Chemical reviews*, 115(14), 6687-6718.
- Nizar, A. A. S., Saputra, E. R., & Zulkana, A. (2019). Pengaruh perlakuan kimia terhadap karakteristik zeolit alam aktif. *Prosiding SNTK Eco-SMART*, 1(1).
- Oktavia, B., Nasra, E., & Putra, J. K. Aplikasi Zeolit Alam Sebagai Fasa Diam Pada Kromatografi Ion. *Semirata 2015*.
- Rahayu, F. L., Nuryanto, R., & Suyati, L. (2013). Pengaruh Diameter Kanal Pelet Katalis Zeolit Aktif dan Ni-Zeolit terhadap Pirolisis Limbah Batang Pohon Sagu (*Metroxylon* sp.). *Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi*, 16(1), 33-37.
- Retnaningsih, T. (2020). *Sintesis dan karakterisasi zeolit hierarki terimpreg Ni-Mo untuk catalytic cracking minyak jarak pagar (Jatropha curcas L.)* (Bachelor's thesis, Fakultas Sains dan Teknologi Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta).
- Sihombing, J. L., Ginting, E., Amdayani, S., Pulungan, A. N., Tanjung, V., Sandy, A. A., & Rahayu, R. (2022, February). Characterization of sarulla natural zeolite activated with various acid concentration and loaded with Ni and Ni-Mo metals as bifunctional catalysts. In *Journal of Physics: Conference Series* (Vol. 2193, No. 1, p. 012081). IOP Publishing
- Sofith, C. D., & Effendi, S. R. (2020). Kinerja Aktivasi dan Impregnasi Zeolit Alam sebagai Adsorben. *Jurnal Teknik Kimia USU*, 9(2), 75-79.
- Widianti, S., Destiarti, L., & Wahyuni, N. (2022). Adsorpsi Senyawa Organik pada Lindi TPA Batu Layang menggunakan Zeolit Alam Teraktivasi. *Ar-Razi Jurnal Ilmiah*, 10(1).
- Wirawan, S. K., Sudiby, H., Setiaji, M. F., Warmada, I. W., & Wahyuni, E. T. (2015). Development of natural zeolites adsorbent: chemical analysis and preliminary TPD adsorption study. *Journal of Engineering Science and Technology*, 10(Spec. issue4), 87-95.