

STUDI PENGARUH METODE PEMBUATAN DAN SUMBER BAHAN BAKU PADA PROSES PRODUKSI KATALIS DARI ZEOLIT ALAM

Widayat¹, H Satriadi¹, Achmad Roesyadi², dan H M Rachimoellah²

¹) Jurusan Teknik Kimia, Fak Teknik, Universitas Diponegoro Semarang

²) Laboratorium Teknik Reaksi Kimia Jurusan Teknik Kimia

Fakultas Teknologi Industri Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya Kampus Sukolilo ITS

E-mail: yayat_99@yahoo.com

Abstrak

Indonesia mempunyai potensi zeolit alam yang cukup besar. Zeolit alam ini umumnya mempunyai kandungan silika sebesar 60%, selain itu juga mengandung komponen alumina. Silika dan alumina merupakan senyawa oksida yang dapat digunakan sebagai katalis, khususnya dalam proses dehidrasi. Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh metode pembuatan katalis dalam proses produksi katalis dari zeolit alam. Respon yang diamati adalah luas permukaan, perbandingan silika dengan alumina dan kristalinitas. Luas permukaan diukur dengan metode BET dan kristalinitas dengan analisa XRD serta komposisi silika alumina dengan AAS. Metode yang digunakan dalam penelitian ini adalah proses penukaran ion –pengembangan dengan alkohol dan proses dealuminasi dengan larutan asam klorida. Bahan baku yang digunakan adalah zeolit alam dari Kabupaten Malang, Propinsi Lampung dan Kabupaten Gunung Kidul. Hasil penelitian menunjukkan bahwa proses dealuminasi dengan asam klorida menghasilkan luas permukaan lebih baik dibandingkan dengan proses penukaran ion dan pengembangan dengan alkohol. Selain itu katalis yang dihasilkan dengan proses dealuminasi adalah katalis silikat jika bahan baku dari Kabupaten Gunung Kidul dan jenis mordenite jika bahan baku yang digunakan berasal dari Kabupaten Malang.

Kata kunci: katalis zeolit, zeolit alam, luas permukaan, kristalinitas, perbandingan Si/Al

Abstract

Indonesia has the potential for considerable natural zeolites. This natural zeolites, silica deposits typically have amounted to 60%, it also contains components of alumina. Silica and alumina oxide compound that can be used as a catalyst, particularly in the process of dehydration. This research aims to study the influence of the method of manufacture of catalysts in the production process of natural zeolite catalyst. The observed response is the surface area in comparison with silica, alumina and kristalinitas. The surface area is measured by the method kristalinitas and BET with XRD analysis as well as the composition of the silica-alumina with AAS. The methods used in this research is the process of exchanging ions-development with alcohol and dealumination process with hydrochloric acid solution. The raw materials used are natural zeolite from Malang, Lampung Province and Regency of Gunung Kidul. The results showed that dealuminasi process with hydrochloric acid produces a better surface area compared to the ion exchange process and development with alcohol. Besides the resulting catalyst with silicate dealuminasi process is a catalyst if the raw material of the Regency of Gunung Kidul and mordenite type if the raw materials used originate from Malang.

Key words : Zeolite catalyst, natural zeolites, surface area, crystallite, Si/Al comparison

PENDAHULUAN

Katalis memegang peranan penting dalam perkembangan industri kimia. Pada dewasa ini, hampir semua produk industri dihasilkan melalui proses yang memanfaatkan jasa katalis, baik satu atau beberapa proses. Katalis tidak terbatas pada bagian proses konversi bahkan juga untuk bagian proses pemisahan. Penggunaan katalis di industri sekitar 50 % (Levenspiel, 1999). Katalis atau katalisator merupakan suatu bahan yang mempengaruhi laju reaksi kimia tetapi pada akhirnya keluar tanpa mengalami perubahan (Fogler, 1992; Levenspiel, 1999). Katalis berdasarkan fasenya reaksinya dapat digolongkan menjadi katalis homogen dan heterogen. Katalis heterogen mempunyai kelebihan dalam pemisahan dari sisa reaktan dan produk serta tahan terhadap temperatur tinggi. Salah satu jenis katalis yang banyak digunakan saat ini adalah zeolit. Katalis zeolit dapat digunakan dalam proses dehidrasi, isomerisasi, polimerisasi, perengkahan, alkilasi dan lain-lain.

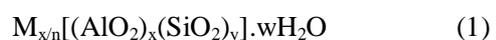
Zeolit merupakan polimer anorganik, yang tersusun dari unit berulang terkecil berupa tetrahedral SiO_4 dan AlO_4 . Pada saat ini dikenal sekitar 40 jenis zeolit alam, meskipun yang mempunyai nilai komersial ada sekitar 12 jenis, diantaranya klinoptilolit, mordenit, filipsit, kabasit dan erionit. Di Indonesia, deposit zeolit alam cukup besar dan kemurniannya cukup tinggi. Daerah-daerah yang mempunyai tambang zeolit diantaranya; daerah Lampung Selatan, Bayah, Cikembar, Cipatujah, Jawa Barat Nangapada, Kabupaten Ende NTT, Kabupaten Malang, dan Kabupaten Gunung Kidul. Konsentrasi kandungan silika yang ada sekitar 60%. Pemanfaatan zeolit alam di Indonesia masih terbatas untuk pengolahan air, pertanian dan bahan imbuhan makanan hewan, sebagai bahan imbuhan tanah dan kompos, sebagai pembawa pestisida dan herbisida, dan sebagai media tanam. Deposit zeolit alam yang ada di Indonesia, seperti disajikan dalam Tabel 1. Tabel 1 menunjukkan bahwa komposisi silika pada zeolit alam cukup besar. Demikian juga dengan kandungan alumina. Umumnya zeolit alam di Indonesia merupakan jenis mordenite. Untuk dapat digunakan dalam proses di industri, zeolit alam membutuhkan proses lebih lanjut sehingga kemampuan lebih baik. Sebagai katalis beberapa

karakteristik yang harus diperhatikan adalah kemurnian (dalam kasus ini ditunjukkan oleh komposisi selika dan alumina /perbandingan Si/Al), luas permukaan, keasaman, serta kristalinitasnya.

Tabel 2. Karakteristik dan deposit alam yang ada di Indonesia (dirangkum dari Rosdiana Edy, 2007)

| Parameter (%) | Daerah | | | |
|-------------------------|--------------------|---------------|--------------------|-----------------|
| | Bayah Lebak Banten | Tasikmalaya | Cikembur, Sukabumi | Nanggung, Bogor |
| SiO_2 | 64,55 | 61,40 – 70,60 | 68,0 – 69,8 | 61,39 – 66,16 |
| Al_2O_3 | 12,83 | 11,49 – 3,84 | 11,85 – 13,16 | 12,04 – 14,12 |
| Fe_2O_3 | 1,38 | 1,15 – 5,30 | 1,52 – 2,39 | 1,18 – 1,98 |
| CaO | 1,64 | 1,88 – 4,16 | 1,54 – 2,23 | 1,75 – 3,78 |
| MgO | 0,71 | 0,40 – 2,77 | 0,27 – 0,52 | 0,55 – 0,90 |
| K_2O | 2,81 | 0,90 – 4,01 | 2,59 – 5,0 | 0,30 – 1,78 |
| Na_2O | 0,33 | 0,90 – 2,53 | | |
| TiO_2 | 0,22 | 0,06 – 0,85 | 0,03 – 0,19 | |
| LOI | | | 7,76 – 8,66 | |
| H_2O | | 1,98 – 4,46 | | 1,00 – 1,65 |
| Deposit (ton) | | 6.000.000 | 24.151.000 | |

Struktur kerangka ini mengandung saluran atau hubungan rongga yang berisi kation dan molekul air. Kation aktif umumnya bertindak sebagai ion exchange. Air dapat dihilangkan dengan pengeringan. Jika zeolit didasarkan pada satu unit sel kristal dapat dituliskan sebagai berikut :



x dan y : jumlah total tetrahedral per unit sel dengan nilai y / x biasanya sekitar 1 - 5, tetapi zeolit dengan silika tinggi harga y / x dibuat hingga 10 – 100 atau bahkan lebih tinggi (Flanigen, 1991).

Zeolit alam sendiri cukup banyaknya ragamnya. Salah satu kalsifikasi zeolit alam diberikan oleh Collela, 2007 dimana hasil klasifikasi seperti disajikan dalam Tabel 2.

Tabel 2. Klasifikasi zeolit alam menurut Collela, 2007

| Zeolite type | Crystallographical formula | Chemistry | | |
|----------------------------|---|-----------------|------------|----------------------------|
| | | T ₂₄ | Cations | CEC (meq g ⁻¹) |
| Analcime | Na[AlSi ₃ O ₈]·H ₂ O | 0.60-0.74 | Na | 3.6-5.3 |
| Charoite | (Ca ₃ , Na, K) ₄ [Al ₄ Si ₄ O ₂₄]·12H ₂ O | 0.58-0.80 | Ca, Na | 2.5-4.7 |
| Climacopulite ¹ | (Me ^I , Me ^{II}) ₃ [Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂]·~20H ₂ O | 0.80-0.85 | Na, K, Ca | 2.0-2.6 |
| Erionite | K ₂ (Na, Ca _{0.5}) ₃ [Al ₁₀ Si ₁₂ O ₇₂]·~30H ₂ O | 0.72-0.79 | K, Na, Ca | 2.7-3.4 |
| Faujasite ² | (Na, Ca _{0.5} , Mg _{0.5} , K) ₃ [Al ₅ Si ₁₄ O ₅₁]·16H ₂ O | 0.68-0.74 | Ca, Na, Mg | 3.0-3.4 |
| Ferrierite | (K, Na, Mg _{0.5} , Ca _{0.5}) ₃ [Al ₆ Si ₆ O ₃₆]·18H ₂ O | 0.83-0.85 | Mg, K, Na | 2.1-2.3 |
| Heulandite ¹ | (Me ^I , Me ^{II}) ₃ [Al ₆ Si ₆ O ₃₆]·~24H ₂ O | 0.72-0.80 | Ca, K, Na | 2.6-3.6 |
| Lamprite | Ca ₂ [Al ₅ Si ₆ O ₄₈]·18H ₂ O | 0.66-0.71 | Ca | 3.8-4.3 |
| Mordenite | (Na ₂ , Ca, K ₂) ₄ [Al ₆ Si ₆ O ₃₆]·28H ₂ O | 0.80-0.85 | Na, Ca, K | 2.1-2.4 |
| Phillipsite ³ | (K, Na, Ca _{0.5} , Ba _{0.5}) ₃ [Al ₂ Si ₁₆ O ₅₂]·12H ₂ O | 0.52-0.77 | K, Na, Ca | 2.9-5.6 |

keterangan:

T₂₄ : fraksi posisi tetrahedral dalam Si

CEC : Kemampuan penukaran kation yang dihitung sebagai ion Na

1. : jenis isostruktur, kode [HEU]: Me^I = (Na, K); Me^{II} = (Ca, Sr, Ba, Mg)
2. : x = 3.2-4.4
3. : x = 4-7

Modifikasi zeolit umumnya bertujuan sebagai berikut;

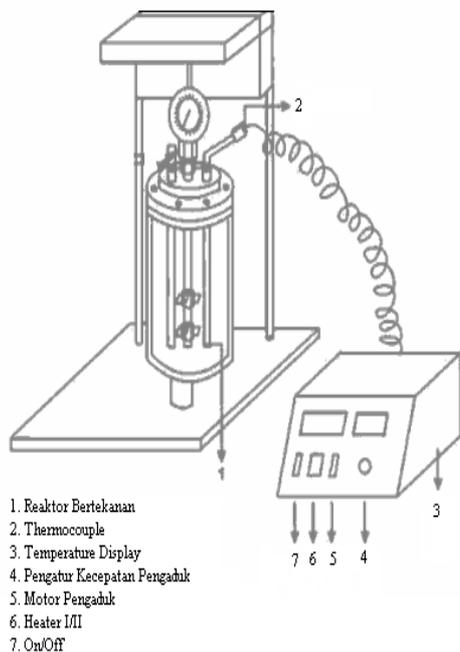
- a. Memperoleh zeolit jenis khusus
- b. Memperoleh perbandingan Si/Al tertentu
- c. Untuk mengenalkan T-atom yang lain (seperti B, Ga, Fe, Ti)
- d. Untuk memproduksi kristal zeolit yang relatif besar atau kecil sesuai yang diharapkan
- e. Untuk memodifikasi morfologi kristal zeolit (Holderich dan van Bekkum, 1991).

Pemanfaatan zeolit alam sebagai katalis, telah banyak dilakukan diantaranya; Pemanfaatan zeolit alam sebagai katalis dalam perengkahan minyak goreng (Widayat, 2005 dan Katalis yang dapat digunakan dalam proses hidrasi dan dehidrasi adalah alumina dan MgO (Fogler, 1992) serta Silika alumina dan WO₃ (Thomas, 1970 dalam Smith, 1981). Karakteristik katalis silika alumina sebagai

katalis proses perengkahan mempunyai luas permukaan antara 200-600 m²/gram, volume pori 0,2 -0,7 cm³/gram dan diameter rata-rata 33-150 Å^o (Wheeler, 1950 dalam Smith 1981).2006), Penggunaan zeolit alam sebagai katalis dalam proses konversi senyawa ABE menjadi hidrokarbon (Setiadi dan Pratiwi, 2007). Pengolahan zeolit alam mejadi katalis juga telah banyak dilakukan diantaranya dengan pengembangan dengan logam Cr (Setyawan dan Handoko, 2002), Pengembangan dengan Fe₂O₃ dimana dapat meningkatkan keasamannya (Trisunaryanti, dkk 2007). Dalam penelitian ini, dilakukan pembuatan katalis dengan bahan baku zeolit alam. Dalam makalah ini, dipelajari pengaruh metode proses pembuatan katalis dan sumber abhan baku terhadap perbandingan Si/Al dan luas permukaan. Katalis yang dihasilkan, akan digunakan sebagai katalis dalam proses dehidrasi, khususnya proses dehidrasi etanol menjadi DiEtil Eter. Dalam perkembangannya, banyak peneliti yang mengembangkan zeolit sebagai katalis dalam proses dehidrasi.

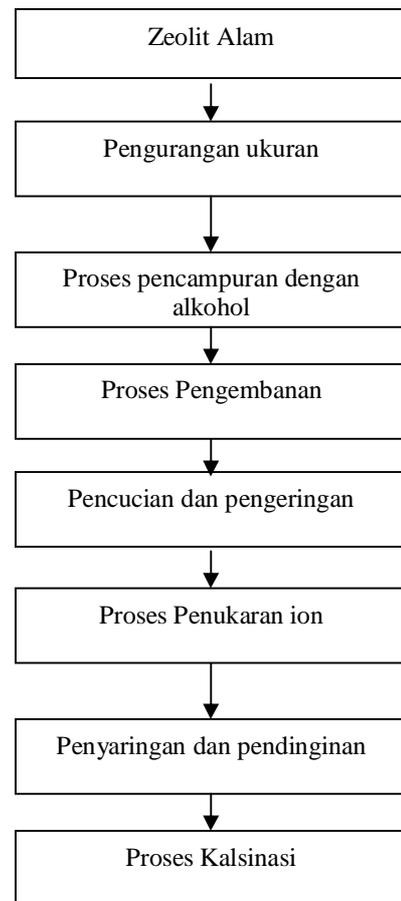
METODE PENELITIAN

Bahan baku utama dalam penelitian ini adalah zeolit alam. Zeolit alat diperoleh dari tiga lokasi yaitu Wonosari Kabupaten Gunung Kidul, Lampung dan Kabupaten Malang. Zeolit alam yang diperoleh setelah dikurangi ukurannya sampai 150-200 mesh, dianalisa kadar air dan komposisi komponen penyusunnya. Hasil analisa seperti disjajikan dalam makalah widayat, dkk (2008). Bahan kimia asam klorida (HCl) diperoleh dari supplier dengan merk Merck, bahan kimia yang lain seperti NH₄Cl, isopropil alkohol, amil alkohol dan etanol diperoleh dari supplier Brataco. Bahan kimia alkohol digunakan sebagai template pada zeolit alam dari Kabupaten Malang dan Propinsi Lampung. Larutan asam klorida dan amonium klorida sebagai penukar ion. Peralatan yang digunakan terdiri dua buah alat untuk proses dealuminasi dan alat untuk pengembangan alkohol. Alat untuk proses dealuminasi terdiri dari labu leher tiga, yang dilengkapi pendingin, pemanas air dan pengaduk. Pengaduk yang digunakan dibedakan dengan pengaduk motor dan pengaduk magnetik. Untuk proses pengembangan alat yang digunakan reaktor bertekanan seperti disajikan dalam Gambar 1.



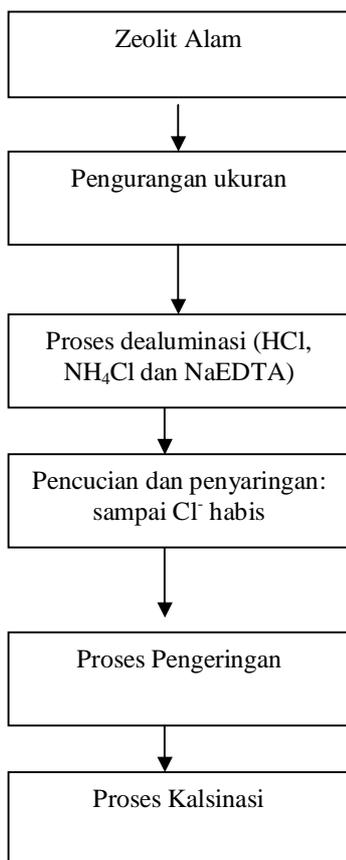
Gambar 1. Reaktor bertekanan untuk sintesis katalis zeolit

Respon yang diamati selama penelitian adalah berat katalis yang diperoleh, kadar SiO_2 , Al_2O_3 dan luas permukaan serta kristalinitas. Analisa kandungan SiO_2 , Al_2O_3 dilakukan di Laboratorium TAKI dan analisa karakteristik katalis (luas permukaan, volume rata-rata pori dan jari-jari rata-rata pori) dilakukan di Laboratorium Instrumentasi Departemen Teknik Kimia FTI ITB. Analisis kristalinitas dengan alat XRD dilakukan di Research Center ITS. Tahap pertama, Percobaan pembuatan katalis dilakukan dengan bahan baku zeolit alam dari Kabupaten Malang dan Propinsi Lampung. Zeolit alam diperlakukan meliputi tahapan sebagai berikut; reaksi dengan template dilangsungkan dalam reaktor bertekanan selama waktu tertentu pada temperatur moderate, pencucian, pengeringan, perendaman dalam larutan asam atau penukaran ion dan proses kalsinasi. Secara lengkap seperti disajikan dalam Gambar 2.



Gambar 2. Blok diagram proses pembuatan katalis metode I

Untuk zeolit alam dari Kabupaten Gunung Kidul perlakuannya adalah proses dealuminasi (asam klorida, NH_4Cl dan NaEDTA); proses penyaringan, pengeringan dan proses kalsinasi. Proses dealuminasi dilangsungkan pada tekanan atmosferik dan temperaur refluks selama waktu tertentu. Proses kalsinasi pada kondisi inert dengan mengalirkan gas nitrogen sebesar 250 cc/menit pada kondisi temperatur 500°C selama 5 jam. Secara lengkap seperti disajikan dalam Gambar 3. Metode ini didasarkan dari penelitian yang dilakukan oleh (Boveri, dkk 2006). Produk katalis selanjutnya dianalisa karakteristiknya yang meliputi komposisi silika dan alumina, luas permukaan spesifik, volume tota pori dan kristalinitasnya.



Gambar 3. Blok diagram proses pembuatan katalis metode II

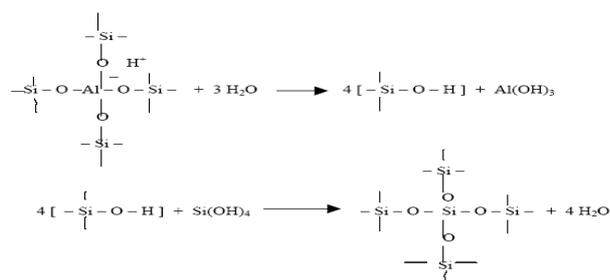
HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil analisa karakteristik perbandingan Si/Al pada produk katalis seperti disajikan dalam Tabel 3 Perbandingan Si/Al pada zeolit alam sebesar 7,97; 11,84 sesuai asal Propinsi Lampung dan Kabupaten Malang. Perbandingan Si/Al mengalami kenaikan. Kenaikan terjadi secara signifikan khususnya zeolit yang diperoleh dari Kabupaten Malang dibandingkan dengan Propinsi Lampung. Pada kenaikan rasio Si/Al dari Kabupaten Malang terendah terdapat pada katalis zeolit dengan *template* ethanol dan HCl sebagai penukar ion sebesar 76,21 %, sedangkan kenaikan tertinggi terdapat pada katalis zeolit dengan *template* isopropil alkohol dan NH₄Cl sebesar 433,77 %. Pengemban dapat bersifat netral atau bermuatan berupa molekul organik atau anorganik. Pengemban memiliki beberapa fungsi dalam proses pembuatan zeolit.

Template merombak struktur kimia dari gel dan memperbaiki pembentukan oligomer tipe tertentu didalam larutan. *Template* mengatur agar kondensasi dari oligomer menjadi suatu kerangka yang spesifik, yang berfungsi sebagai stabilisator melalui interaksi elektro statik di dalam pori (Fouad, dkk, 2006). Kenaikan terjadi karena adanya pelarutan senyawa yang mempunyai kelarutan tinggi dalam garam kloridanya. Komponen yang mungkin larut dalam penukaran ion adalah MgCl₂, CaCl₂, KCl, NaCl dan FeCl₃. Dengan adanya kenaikan perbandingan Si/Al maka akan terjadi perubahan kerangka dari zeolit. Perubahan ini terjadi karena adanya reaksi hidrolisis dan proses kalsinasi. Proses perubahan ini seperti dijelaskan dalam reaksi pada Gambar 4.

Tabel 3. Hasil Analisa Perbandingan Si/Al dari Produk Katalis Zeolit

| Penukar ion | Template | Perbandingan Si/Al | |
|--------------------|-------------------|--------------------|---------------|
| | | Kab. Malang | Prop. Lampung |
| HCl | Amil Alkohol | 33,66 | 8,63 |
| | Ethanol | 20,87 | 10,26 |
| | Isopropil alkohol | 26,68 | 13,43 |
| NH ₄ Cl | Amil Alkohol | 50,72 | 8,43 |
| | Ethanol | 25,73 | 8,18 |
| | Isopropil alkohol | 63,22 | 7,95 |



Gambar 4. Reaksi perubahan ikatan dalam zeolit

Karakteristik zeolit yang dilakukan selain perbandingan Si/Al adalah untuk mengetahui luas permukaan, volume pori total dan jari-jari pori rata-rata. Hasil analisa seperti disajikan dalam Tabel 4. Dari ketiga katalis zeolit yang disintesis dari zeolit asal Kabupaten Malang, dilakukan sampling dalam menganalisa luas permukaan. Hasil analisa menunjukkan bahwa katalis -zeolit (NH₄Cl/Amil alkohol) memiliki luas permukaan sebesar 20,0233 m²/g, volume pori rata-rata yaitu sebesar 0,004309 cc/g jari-jari rerata sebesar 13,099 A. Untuk analisa yang sama, dengan bahan zeolit alam dari Lampung diperoleh hasil bahwa *template* yang memberikan luas permukaan terbesar adalah ethanol sebesar 57,4347. Sebagai *templating agent* (pembangun rangka) basa organik dapat bercampur dengan reaktan lainnya. Basa organik juga bisa berfungsi sebagai pengisi rongga. Senyawa yang berfungsi sebagai pengisi rongga ini pada dasarnya mempunyai peranan yang sangat besar dalam pembentukan rangka zeolit, yang akan menghasilkan luas pori yang besar juga yang akan membentuk saluran – saluran didalam strukturnya. Diameter dari pori – pori media zeolit cukup selektif sehingga mampu memisahkan berdasarkan perbedaan ukuran, bentuk dan polaritas dari molekul yang disaring.

Tabel 4.a Hasil Analisa Karakteristik Luas Permukaan Produk Katalis Zeolit dengan bahan baku zeolit alam dari Kab Malang

| Variabel Katalis | luas permukaan (m ² /g) | volume pori (cc/g) | ukuran pori rata-rata (A) |
|--------------------------------------|------------------------------------|--------------------|---------------------------|
| NH ₄ Cl Isopropil alkohol | 16,0284 | 0,001445 | 10,307 |
| NH ₄ Cl Amil Alkohol | 20,0233 | 0,0043309 | 13,099 |
| HCl Amil Alkohol | 17,6663 | 0,0027 | 12,447 |

Tabel 4.b Hasil Analisa Karakteristik Luas Permukaan Produk Katalis Zeolit

dengan bahan baku zeolit alam dari Propinsi Lampung

| Variabel Katalis | luas permukaan (m ² /g) | volume pori (cc/g) | ukuran pori rata-rata (A) |
|----------------------------|------------------------------------|--------------------|---------------------------|
| HCl Amil Alkohol | 53,7341 | 0,019586 | 10,39 |
| NH ₄ Cl Ethanol | 57,4347 | 0,02878 | 14,370 |
| HCl Isopropil alkohol | 52,9621 | 0,026466 | 14,835 |

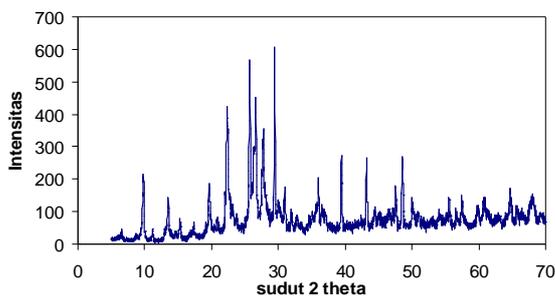
Namun luas permukaan yang dihasilkan masih dibawah nilai dari luas permukaan katalis untuk proses perengkahan /dehidrasi sekitar 200 m²/gram. Hal ini dimungkinkan sih tertutupnya pori-pori dari zeolit alam. 32 ihi kation yang paling besar adalah Ca, sehingga membutuhkan konsentrasi yang cukup tinggi dari penular ionnya.

Dalam penelitian ini digunakan variabel tetap setiap 1 gram zeolit alam ditambahkan 20 ml larutan HCl, kecepatan pengadukan, dan lama proses dealuminasi 5 jam. Proses dealuminasi dilakukan dalam labu leher tiga. Hasil penelitian seperti disajikan dalam Tabel 5. Tabel 5. merupakan hasil penelitian dengan melakukan jenis pelarut. Hasil penelitian menunjukkan katalis dihasilkan pada pelarut NaEDTA berwarna kuning kecoklatan. Komponen yang dapat menyebabkan padatan berwarna kuning kecoklatan adalah Fe, Zn, Cu dan Pb. Hasil analisa katalis diperoleh hasil konsentrasi Fe sebesar 0,57% dan Zn sebesar 0,37%, dan Pb serta Cu nihil. Hasil analisa terhadap bahan baku menunjukkan bahwa Fe adalah 0 (meskipun hasil BPPT ada kandungan Fe nya). Hal ini menunjukkan bahwa Fe yang ada di dalam katalis dapat berasal dari larutan NaEDTA. Komponen Zn dapat juga berasal dari pelarut NaEDTA ataupun berasal dari bahan baku. Hal ini dapat ditunjukkan bahwa katalis yang dihasilkan dengan pelarut asam klorida sebagian besar juga berwarna kekuningan, walaupun warnanya tidak sekuat produk katalis yang dihasilkan oleh pelarut NaEDTA ataupun NH₄Cl. NaEDTA yang digunakan merupakan NaEDTA kualitas teknis. Dengan demikian pelarut NH₄Cl dan NaEDTA lebih baik tidak digunakan sebagai pelarut dalam proses dealuminasi. Jika ditinjau

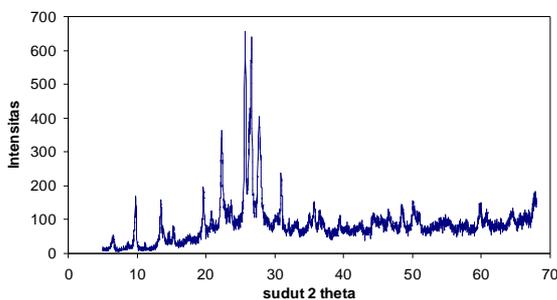
dari pelarutan alumina, maka hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar konsentrasi asam klorida (HCl) maka % kandungan alumina SiO_2 atau Al_2O_3 semakin kecil. Hal ini menunjukkan bahwa semakin banyak alumina yang larut dalam pelarut asam klorida. Senyawa alumina merupakan katalis dalam proses hidrasi, sehingga pelarutan yang semakin besar harus dihindari.

Tabel 5. Hasil analisa Karakteristik Si/Al Produk Katalis Zeolit Jenis Pelarut

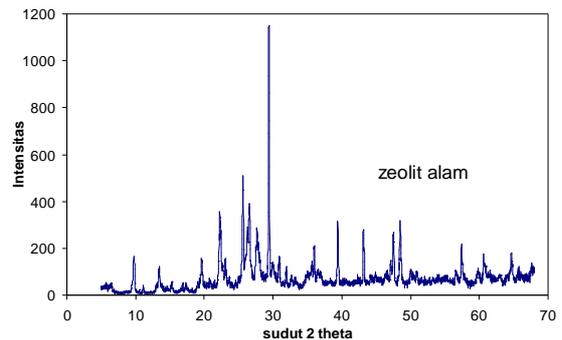
| No | Variabel Proses | padatan terkonversi(%) | Rasio Si/ Al | Warna produk katalis |
|----|----------------------------|------------------------|--------------|----------------------|
| 1 | 8 M HCl | 41,13 | 943,10 | Kekuningan |
| 2 | NH_4Cl 1 M | 50,23 | 489,32 | Coklat |
| 3 | NaEDTA 0,5 M | 31,3 | 270,91 | Coklat |
| 4 | 0,5 M HCl | 39,85 | 506,21 | kekuningan |



a. Pelarut NH_4Cl



b. Pelarut HCl



c. Zeolit alam

Gambar 6. Diffraktogram produk katalis

Hasil analisa kristalinitas dalam pengaruh jenis pelarut seperti disajikan dalam Gambar 6. Gambar 6 terdiri dari diffraktogram dari bahan baku zeolit alam, produk katalis dengan pelarut asam klorida dan produk katalis dengan pelarut NH_4Cl . Hasil analisis menunjukkan bahwa proses dealuminasi menggunakan pelarut asam klorida menghasilkan diffraktogram yang berbeda dengan proses dealuminasi dengan pelarut NH_4Cl . Sedangkan jika dibandingkan dengan diffraktogram bahan baku hasil diffraktogram produk katalis dengan pelarut NH_4Cl menunjukkan hasil yang tidak terlalu berbeda. Dengan demikian jenis kristal antara keduanya masih sama, sedangkan pelarut asam klorida menyebabkan adanya perubahan diffraktogram atau jenis zeolit sudah mengalami perubahan. Intensitas mengalami perubahan secara signifikan pada sudut theta 20-30. Intensitas yang lain juga mengalami penurunan. Hal ini menunjukkan adanya pengurangan komponen –komponen yang ada di dalam zeolit alam. Perubahan intensitas yang mengalami peningkatan terlihat pada sudut theta 13,45 dan intensitas mengalami penurunan pada sudut theta 40-50. Produk katalis ini mempunyai jenis kristal silicalite. Hal ini dikarenakan yang paling dominan adalah senyawa silika.

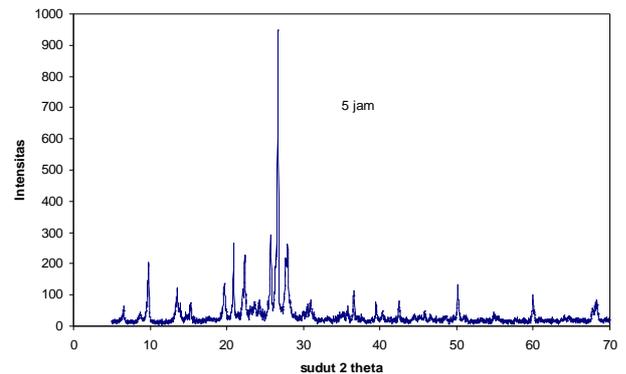
Hasil analisis luas permukaan dari produk katalis seperti disajikan dalam Tabel 6. Hasil analisis menunjukkan bahwa jenis pelarut asam klorida menghasilkan luas permukaan paling besar sekitar $104,1267 \text{ m}^2/\text{gram}$. Peningkatan luas permukaan ini cukup besar, jika dibandingkan dengan luas permukaan bahan baku. Hal ini dikarenakan banyak komponen

impuritas yang larut dalam asam klorida, sehingga luas pori-pori dalam produk katalis menjadi lebih terbuka. Luas permukaan produk katalis dengan pelarut NaEDTA dan NH₄Cl terlalu kecil, bahkan pelarut EDTA menghasilkan produk katalis dengan luas permukaan lebih kecil dari bahan baku.

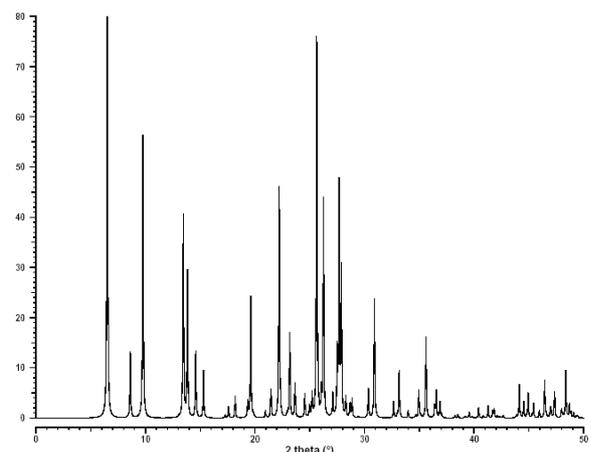
Tabel 6. Hasil analisa luas permukaan dan volume total pori pengaruh jenis pelarut

| No | Variabel | Luas permukaan spesifik (m ² /g) | Volume total pori (cc/g) x 10 ³ |
|----|------------------------|---|--|
| 1 | Na EDTA 0,5 M | 10,9391 | 4,735 |
| 2 | NH ₄ Cl 1 M | 41,2455 | 23,141 |
| 3 | 0,5 M H 5 Jam | 104,1267 | 59,186 |

Proses pembuatan katalis menggunakan metode II, juga dilakukan dengan bahan baku zeolit alam dari Kabupaten Malang. Hasil penelitian masih berupa analisis kristalinitasnya saja (XRD). Hasil analisis seperti disajikan dalam Gambar 7. Hasil analisis kristalinitas dari zeolit alam (Setiadi dan Pratiwi, 2007) menunjukkan bahwa zeolit merupakan jenis modernite. Setelah mengalami pengolahan dengan metode II, ternyata jenis kristalinitas masih tetap. Hal ini seperti ditunjukkan oleh perbandingan hasil difraktogram (XRD) dari produk katalis dengan difraktogram Gramlich, (1971). Perbedaan peak antara difraktogram dari produk katalis dengan bahan baku zeolit alam dari Kabupaten Malang dan katalis modernite Gramlich (1971) pada sudut 2 theta 6. Pada hasil Gramlich (1971) terdapat peak yang cukup tajam, sedangkan dalam produk katalis ini tidak ada peaknya. Namun pada sudut theta 10, 20-30 ada peak yang sama antara kedua difraktogram tersebut. Dengan demikian dapat diambil suatu kesimpulan bahwa produk katalis mempunyai jenis modernite.



Gambar 7. Difraktogram produk katalis zeolit dengan bahan baku zeolit alam dari Kabupaten Malang



Gambar 8. Difraktogram zeolit jenis Mordenite (Gramlich, 1971 dalam Treacy dan Higgins, 2001)

KESIMPULAN

Hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa;

1. metode pembuatan katalis metode II (proses dealuminasi, proses penyucian, pengeringan dan kalsinasi) lebih baik ditinjau dari karakteristik katalis dari pada metode I (proses pengembangan, pencucian, proses penukaran ion dan proses kalsinasi).
2. Produk katalis dengan proses pembuatan metode I, mempunyai karakteristik luas permukaan yang rendah dimana perbandingan Si/Al paling tinggi sekitar 63,22 (untuk bahan baku Kabupaten Malang) dan 13,34 (untuk bahan baku Propinsi Lampung). Luas permukaan tertinggi sekitar

- 20,023 m²/gram dan volume pori total 4,33 x 10⁻³ cc/gr (untuk bahan baku zeolit alam Kabupaten Malang) dan 57,435 m²/gram dan volume pori total 28,78 x 10⁻³ cc/gr (untuk bahan baku zeolit alam Propinsi Lampung)
3. Produk katalis dengan proses pembuatan metode II, mempunyai karakteristik luas permukaan yang rendah dimana perbandingan Si/Al paling tinggi sekitar 270,91 (untuk bahan baku zeolit alam Kabupaten Gunung Kidul). Luas permukaan tertinggi sekitar 104,13 m²/gram dan volume pori total 59,19 x 10⁻³ cc/gr
 4. Proses pembuatan katalis dengan metode II, paling bagus menggunakan jenis pelarut asam klorida, selanjutnya NH₄Cl dan NaEDTA.
 5. Produk katalis yang dihasilkan mempunyai jenis silicalite (bahan baku zeolit alam Kabupaten Gunung Kidul) dan modernite (bahan baku zeolit alam Kabupaten Malang)

DAFTAR PUSTAKA

- Anonim, 2007, Laporan Tahunan Kegiatan Penelitian, BPPT Jakarta
- Boveri M, C Ma´rquez-A´lvarez, M.A Laborde, dan E Sastre, 2006, *Steam And Acid Dealumination Of Mordenite Characterization And Influence On The Catalytic Performance In Linear Alkylbenzene Synthesis, Catalysis Today* hal 217 255
- Colella, C, (2007), “Natural Zeolites and Enviroment”, dalam *Introduction to Zeolite Science and Practice* editor J, Celka, H van Bekkum, A., Corma dan F Schuth, edisi ketiga revisi, Radarweg, Amsterdam hal. 999-1036.
- De Boer, JH, RB Fahim, BGLinsen, WJ Vissere and WFNM deVlesschauwer, 1967, “*Kinetics of the Dehydration of Alcohol on Alumina*”, *Jounal of Catalysis*, 7 pp163-17
- Flaningen, EM., (1991), “*Zeolites and Molecular Sieves an Historical Perspective*” dalam *Introduction to Zeolite Science and Practice*, editor Van Bekkum, H, E.M Flaningen, and J.C. Jansen, Vol. 58, New York, Elsevier.USA hal 13-34.
- Fogler, Scott H. 1991. “*Elements of Chemical Reaction Engineering* “. University of Michigan, USA
- Fouad O.A., R.M. Mohamed, M.S. Hassanand I.A. Ibrahim. 2006. “*Journal :Effect of template type and template_silica mole ratio on the crystallinity of synthesized nanosized ZSM-5*”. Central Metallurgical Research and Development Institute, Cairo, Mesir
- Haber J., K. Pamin, L. Matachowski, B. Napruszewska, and J. Pol_towicz, 2002, “*Potassium and Silver Salts of Tungstophosphoric Acid as Catalysts in Dehydration of Ethanol and Hydration of Ethylene*”, *Journal of Catalysis* 207, 296–306
- Holderich, WF dan H van Bekkum, (1991), “*Zeolites in Organic Synthesis*” dalam *Introduction to Zeolite Science and Practice*, editor Van Bekkum, H, E.M Flaningen, and J.C. Jansen, Vol. 58, New York, Elsevier.USA hal 631-726.
- Levenspiel, O, 1999, “*Chemical Reaction engineering*”, edisi ketiga, John wiley and Sons, New York
- Rodiana Eddy, H 2007, Potensi dan Pemanfaatan Zeolit di Provinsi Jawa Barat dan Banten, <http://www.dim.esdm.go.id> - Pusat Sumber Daya Geologi (PMG)
- Setiadi dan A Pertiwi, 2007, “*Preparasi Dan Karakterisasi Zeolit Alam Untuk Konversi Senyawa Abe Menjadi Hidrokarbon*”, Prosiding Symposium dan Kongres Masyarakat Katalis Indonesia Kedua, Jurusan Teknik Kimia FT UNDIP dan Jurusan Kimia MIPA UNNES, Semarang
- Setyawan D dan P. Handoko, 2002, Preparasi Katalis Cr/Zeolit Melalui Modifikasi

Zeolit Alam, Jurnal Ilmu Dasar Vol 3 No.
hal 15-23

Smith, J.M. 1981. “ **Chemical Engineering Kinetics**”. McGraw-Hill Book Co, Singapura

Takahara I, M Saito, M Inaba, and K Murata, 2005, “*Dehydration of ethanol into ethylene over solid acid catalysts*”, Catalysis Letters, Vol 105, pp 249-252

Treacy, M.M.J dan J.B Higgins, (2001), “*Collection Of Simulated XRD Powder Patterns For Zeolites*”, edisi ke-4, International Zeolite association.

Van Bekkum, H, E.M Flaningen, and J.C. Jansen, 1991. “*Introduction to Zeolite Science and Practice* “. New York : Elsevier.USA

Trisunaryanti, W, S Purwono, dan Hastanti, 2007, “Preparasi Dan Karakterisasi Katalis Fe_2O_3 Yang Diimbangkan Pada Zeolit Alam Teraktivasi Hcl Atau Na_2EDTA , Prosiding Symposium dan Konggres Masyarakat Katalis Indonesia Kedua, Jurusan Teknik Kimia FT UNDP dan Jurusan Kimia MIPA UNNES Semarang

Widayat, 2005, “Pembuatan Bahan Bakar Biodiesel Dengan Proses Perengkahan Berkatalis Zeolit Dan Bahan Baku Minyak Goreng Berbahan Dasar Crude Palm Oil, Prosiding Seminar Nasional Fundamental dan Aplikasi Teknik Kimia Jurusan Teknik Kimia FTI Institut Teknologi Surabaya, Surabaya, 23-24 Nopember 2005 , ISSN: 1410-5667

Widayat, 2006, ”Pembuatan Bahan Bakar Cair dari Minyak Goreng Bekas dengan Proses *Catalytic Cracking*, Prosiding Seminar Nasional Masyarakat Katalis Indonesia (MKICS) Indonesian *Catalyst Society* 2006, Departemen Kimia MIPA UI, Departemen Gas dan Petrokimia FT UI, Pusat Penelitian Kimia LIPI MKI, 26-27 Juni 2006 ISSN: 979-8768-05-1