

Karakterisasi Pori Adsorben Berbahan Baku Kaolin Capkala dan Zeolit Dealuminasi

Ruth Febriana Kesuma^{1*}, Berlian Sitorus¹, Adhitiyawarman¹

Program Studi Kimia, Fakultas MIPA Universitas Tanjungpura Pontianak

Jl. Prof Dr. H. Hadari Nawawi

*email : ruth_chemistry08@yahoo.co.id

ABSTRAK

Karakterisasi pori adsorben hasil kombinasi antara kaolin capkala dan zeolit dealuminasi telah dilakukan. Adsorben dibuat dengan mencampurkan kaolin dan zeolit dealuminasi dengan perbandingan komposisi kaolin dan zeolit 3:1, 1:1, dan 1:3. Variasi komposisi dilakukan untuk mengetahui pengaruh komposisi kaolin dan zeolit dealuminasi terhadap karakteristik pori adsorben yang meliputi luas permukaan, rerata jejari pori dan volume total pori. Tahapan pembuatan adsorben meliputi preparasi kaolin dan zeolit serta dealuminasi zeolit. Karakterisasi material menggunakan Gas Sorption Analyzer untuk mengetahui karakter pori kaolin, zeolit dan adsorben hasil kombinasi dan X-Ray Diffraction untuk mengetahui tingkat kristalinitas zeolit. Dari hasil penelitian diperoleh bahwa adsorben dengan perbandingan komposisi kaolin dan zeolit dealuminasi 1:3 memiliki luas permukaan dan volume total pori terbesar yaitu 120,57 m²/g dan 0,1369 cc/g serta rerata jejari pori terkecil yaitu 22,7 Å. Jika dibandingkan dengan material awalnya, luas permukaan adsorben 1:3 meningkat 149% dan volume total pori 59% dan diikuti penurunan rerata jejari pori sekitar 36%.

Kata kunci : kaolin capkala, luas permukaan, rerata jejari pori, volume total pori, zeolit dealuminasi

PENDAHULUAN

Asetilena, hidrogen sulfida, karbon dioksida, dan metana merupakan gas yang banyak dihasilkan di alam. Keberadaan gas-gas ini pada konsentrasi tertentu akan menimbulkan polusi udara. Salah satu cara untuk menghilangkan gas tersebut adalah dengan menggunakan adsorben. Adsorben adalah material yang dapat mengadsorpsi gas berdasarkan karakteristik porinya. Penggunaan material berpori seperti kaolin, sepiolit, silika, dan zeolit sebagai penyerap gas telah banyak dilakukan. Truong dan Abatzoglou (2005) mengkombinasikan Fe₂O₃ dan Fe₃O₄ dengan monmorillonit untuk mengadsorpsi H₂S dalam biogas. Delgado *et al.* (2007) menggunakan sepiolit untuk memisahkan CO₂ dari campuran CO₂/CH₄ melalui *Pressure Swing Adsorption*. Cosoli *et al.* (2008) menggunakan zeolit jenis faujasit, NaX dan NaY sebagai adsorben untuk menghilangkan H₂S dalam biogas. Berdasarkan penelitian-penelitian tersebut, maka kaolin dan zeolit memiliki potensi untuk mengadsorpsi gas. Kaolin dapat mengadsorpsi gas-gas seperti CO₂, CH₄, dan H₂S. Karena kemampuannya untuk menyerap banyak gas, selektivitas kaolin menjadi terbatas. Sedangkan zeolit memiliki selektivitas yang baik dalam menyerap gas-gas tertentu. Karena itu, dilakukan kombinasi dari kedua material tersebut agar diperoleh adsorben dengan selektivitas yang baik.

Kemampuan adsorpsi gas dipengaruhi oleh tekstur pori adsorben. Adsorpsi gas memerlukan adsorben dengan ukuran pori mikro ($d \leq 20\text{\AA}$) karena gas memiliki ukuran molekul yang kecil yakni $< 4\text{\AA}$ (Tagliabue *et al.*, 2009). Karena itu, pada penelitian ini digunakan kaolin dan zeolit yang merupakan material mikropori. Adsorpsi gas oleh adsorben mikropori terjadi melalui proses pengisian mikropori. Proses adsorpsi gas oleh adsorben dipengaruhi oleh interaksi van der Waals yang berkaitan dengan polarisabilitas molekul adsorbat dan adsorben. Semakin luas permukaan adsorben, maka interaksi van der Waals lebih sering terjadi sehingga penyerapan gas semakin besar (Tagliabue *et al.*, 2009). Jika ukuran molekul sebanding dengan ukuran pori adsorben, maka gas akan teradsorpsi ke dalam adsorben. Peristiwa ini disebut dengan mekanisme sterik (Krungeleviciute *et al.*, 2008). Berdasarkan hal tersebut, maka dilakukan karakterisasi dari kaolin, zeolit dan adsorben hasil kombinasi dari keduanya.

Kaolin banyak terdapat di Kalimantan Barat. Kaolin berwarna kecoklatan, liat dalam keadaan basah, dan keras dalam keadaan kering. Kaolin merupakan jenis lempung dengan tipe kisi 1:1. Mineral kaolinit adalah alumina-silikat terhidrasi dengan rumus kimia Al₂O₃:SiO₂:H₂O = 1:2:2 per sel satuan dengan struktur berlapis, ukuran partikel $< 2\mu\text{m}$, dan luas permukaan spesifik 7-20 m²/g (Rodiansono dkk., 2007). Zeolit merupakan senyawa alam yang banyak terdapat di Indonesia.

Zeolit merupakan mineral aluminosilikat terhidrasi dari logam alkali dan alkali tanah. Struktur tiga dimensi zeolit berperan penting terhadap penyaringan molekul (Ulfah dkk., 2006). Zeolit alam memiliki luas permukaan 48 m²/g dengan rerata jejari pori sekitar 35Å. Karena itu kemampuan adsorpsi zeolit rendah. Proses dealuminasi pada zeolit diketahui dapat meningkatkan daya adsorpsi zeolit.

Pada penelitian ini, dilakukan karakterisasi pori dari tiga variasi komposisi adsorben kaolin capkala – zeolit dealuminasi yang meliputi luas permukaan, rerata jejari pori, dan volume total pori. Pembuatan adsorben meliputi preparasi kaolin dan zeolit serta dealuminasi zeolit. Dari hasil penelitian akan dilihat pengaruh variasi komposisi terhadap karakter pori adsorben.

METODOLOGI PENELITIAN

Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan antara lain: ayakan 100 mesh, *Gas Sorption Analyzer*, tanur, *X-Ray Diffraction type PAN analytical X'Pert PRO PW3040/x0*. Bahan-bahan yang digunakan adalah kaolin yang berasal dari Desa Capkala Kabupaten Bengkayang Kalimantan Barat dan zeolit alam.

Cara kerja

1. Preparasi Kaolin dan Zeolit Alam

Kaolin dicuci dengan akuades dan dikeringkan dalam oven pada $T = 100^{\circ}\text{C}$. Setelah itu diseragamkan ukurannya dengan ayakan 100 mesh. Zeolit alam dicuci dengan akua d.m hingga pHnya mencapai pH pencuci. Setelah itu, zeolit dikeringkan pada $T = 110^{\circ}\text{C}$ selama 4 jam. Kemudian diseragamkan ukurannya dengan ayakan 100 mesh.

2. Demineralisasi, Dealuminasi, dan Kalsinasi Zeolit

Zeolit hasil preparasi didemineralisasi dengan larutan Na₂EDTA 1M selama 1 hari. Selanjutnya zeolit didealuminasi dengan larutan HNO₃ 8M selama 1 hari. Setelah itu, zeolit dioven pada $T = 110^{\circ}\text{C}$ selama 4 jam dan dikalsinasi pada $T = 600^{\circ}\text{C}$ selama 3 jam (Roocyta, 2006).

3. Pembuatan Adsorben Kaolin Capkala – Zeolit Dealuminasi

Kaolin dan zeolit dealuminasi dicampurkan dengan variasi komposisi kaolin terhadap zeolit (i) 3:1, (ii) 1:1, dan (iii) 1:3. Setelah itu ditambahkan akua d.m sampai keduanya bercampur dan dibentuk menjadi pelet agar lebih mudah menyerap gas. Adsorben dikeringkan pada $T = 100^{\circ}\text{C}$ (Wahono dkk., 2010).

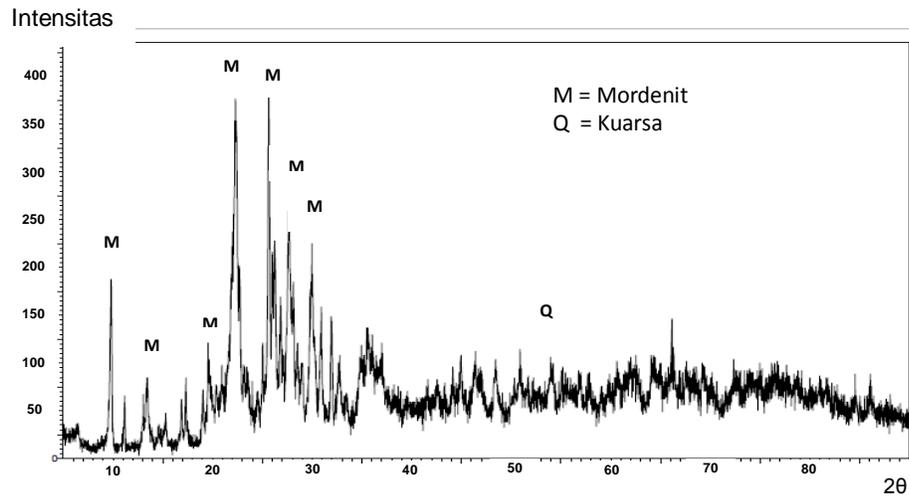
HASIL DAN PEMBAHASAN

1. Preparasi Kaolin dan Zeolit Alam

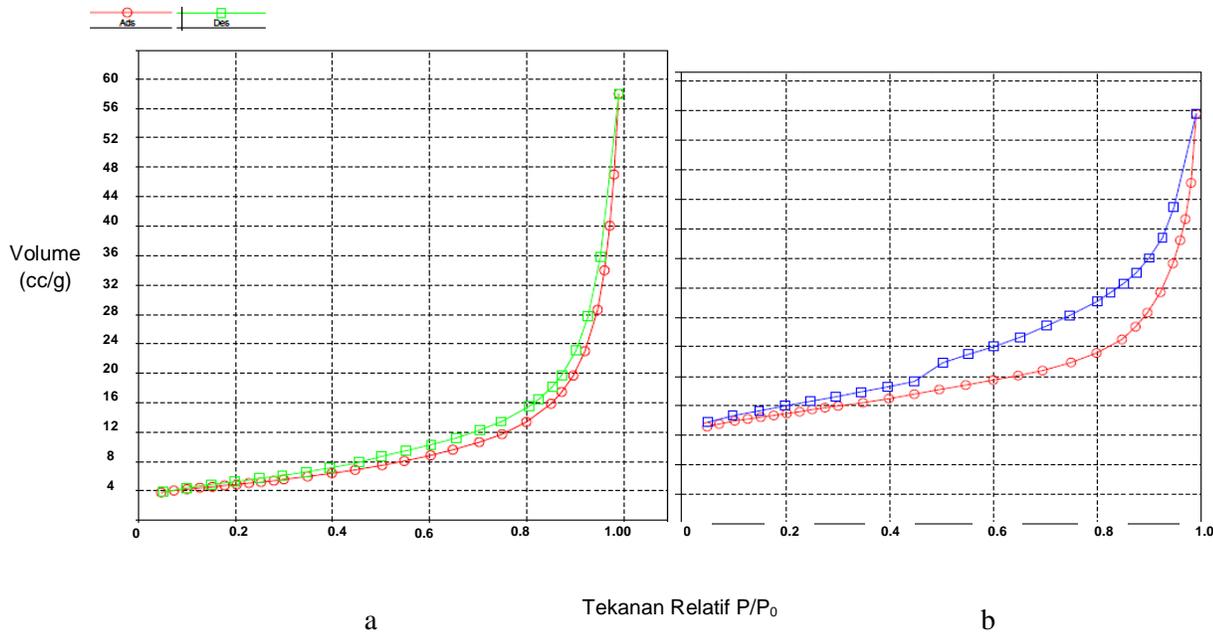
Kaolin dicuci dengan akuades untuk menghilangkan pengotor di permukaan kaolin. Zeolit alam dicuci dengan akua demineralisasi (akua d.m). Akua d.m merupakan pelarut polar yang tidak mengandung mineral sehingga dapat melarutkan pengotor-pengotor bersifat polar yang menempel pada permukaan zeolit. Setelah itu, keduanya diayak dengan ayakan 100 mesh agar diperoleh ukuran partikel yang seragam. Ukuran partikel yang halus akan meningkatkan luas permukaan. Zeolit alam hasil preparasi kemudian dianalisis menggunakan *X-Ray Diffraction*. Hasil analisis XRD zeolit ditunjukkan pada Gambar 1.

Mineral penyusun zeolit alam kebanyakan adalah kuarsa dan mordenit. Hal ini dapat dilihat dari puncak tertinggi zeolit yang berada pada $2\theta = 22,3^{\circ}$ ($d = 3,98\text{\AA}$), $2\theta = 9,79^{\circ}$ ($d = 9,02\text{\AA}$), $2\theta = 25,65^{\circ}$ ($d = 3,47\text{\AA}$), dan $2\theta = 27,66^{\circ}$ ($d = 3,22\text{\AA}$). Sedangkan mineral kuarsa ditunjukkan oleh pada $2\theta = 26,26^{\circ}$ ($d = 3,39\text{\AA}$). Menurut Gramlich (1971), mineral mordenit memiliki puncak khas bidang d_{200} dengan $2\theta = 9,77^{\circ}$ ($d = 9,055\text{\AA}$), bidang d_{150} dengan $2\theta = 22,2^{\circ}$ ($d = 4,004\text{\AA}$), bidang d_{202} dengan $2\theta = 25,63^{\circ}$ ($d = 3,476\text{\AA}$), dan bidang d_{511} dengan $2\theta = 27,67^{\circ}$ ($d = 3,223\text{\AA}$). Berdasarkan keterangan tersebut dapat disimpulkan bahwa zeolit yang digunakan merupakan jenis mineral mordenit.

Karakter pori kaolin dan zeolit hasil preparasi dianalisis menggunakan GSA seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 2. Kaolin dan zeolit alam sebelum diaktivasi merupakan material mikropori (Tagliabue *et al.*, 2007). Hal ini terlihat pada Gambar 2, baik kaolin maupun zeolit memiliki rentang linier P/P₀ antara 0,05-0,3. Rentang ini mengikuti isoterm adsorpsi BET di mana adsorpsi gas terjadi melalui pengisian mikropori (*micropore filling*). Interaksi yang terjadi antara adsorbat dan adsorben adalah apabila ukuran molekul gas CO₂ sebanding dengan ukuran pori adsorben.



Gambar 1. Hasil Analisis XRD Zeolit Alam



Gambar 2. Grafik isoterm adsorpsi: (a) Kaolin Capkala, (b) Zeolit Alam

2. Demineralisasi, Dealuminasi, dan Kalsinasi Zeolit

Aktivasi zeolit dilakukan melalui demineralisasi dan dealuminasi. Tujuan demineralisasi dengan Na₂EDTA 1M adalah untuk menghilangkan logam-logam pengotor yang berada pada permukaan zeolit. Etilen Diamin Tetra Asetat (EDTA) merupakan ligan kuat yang dapat berikatan dengan logam-logam membentuk senyawa kompleks. EDTA memiliki enam atom donor yaitu dua atom nitrogen dan empat atom oksigen dari empat gugus asetat sehingga disebut juga sebagai ligan heksadentat. Satu dari dua atom oksigen pada gugus asetat dapat dikoordinasikan dengan atom pusat. Proses selanjutnya yakni dealuminasi yang ditujukan untuk menjaga stabilitas struktur pori dan

menghilangkan alumina dari kerangka zeolit yang ditunjukkan melalui peningkatan rasio Si/Al. Selain itu, proses dealuminasi juga ditujukan untuk meningkatkan kapasitas adsorpsi zeolit. Konsentrasi optimal dealuminasi zeolit adalah dengan HNO₃ 8M (Roocyta, 2006). Peningkatan konsentrasi asam akan meningkatkan serangan proton H⁺ (Ismail dan Hanudin, 2005). Ion H⁺ akan menyebabkan pemutusan ikatan Al-O dibandingkan ikatan Si-O karena harga disosiasi ikatan Al-O (116 kkal/mol) lebih rendah dibandingkan ikatan Si-O (190 kkal/mol). Kalsinasi pada T = 600°C bertujuan untuk menguapkan basa bronsted dan H₂O serta mengatur tata letak atom yang bertukar sehingga terbentuk oksida logam yang stabil dan terikat kuat pada zeolit (Jestyssa dan Maygasari, 2010).

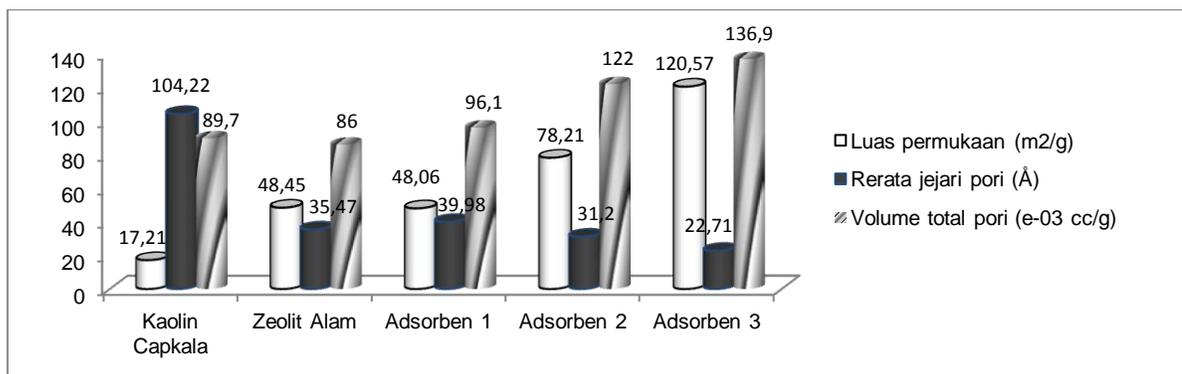
3. Pembuatan Adsorben Kaolin Capkala – Zeolit Dealuminasi

Adsorben kaolin capkala – zeolit dealuminasi dibuat dengan mencampurkan kaolin hasil preparasi dan zeolit hasil dealuminasi. Kaolin dan zeolit dicampurkan dengan perbandingan komposisi kaolin terhadap zeolit (i) 3:1, (ii) 1:1, dan (iii) 1:3. Kemudian adsorben dibentuk menjadi pelet untuk memudahkan gas melewati celah-celah adsorben (Wahono dkk., 2010). Adsorben hasil kombinasi kemudian dianalisis menggunakan *Gas Sorption Analyzer*. Karakterisasi pori adsorben hasil kombinasi antara kaolin dan zeolit ditunjukkan oleh Gambar 3.

Hasil analisis GSA pada Gambar 3 menunjukkan bahwa kaolin memiliki rerata jejari pori dan volume total pori lebih besar dari zeolit alam. Rerata jejari pori kaolin tiga kali besar dari zeolit alam. Artinya ukuran pori kaolin lebih besar dari zeolit. Sedangkan luas permukaan kaolin tiga kali lebih kecil dari zeolit alam. Setelah keduanya dikombinasikan menjadi adsorben, terjadi peningkatan pada luas permukaan dan volume total pori dari masing-masing adsorben. Adsorben 3 memiliki luas permukaan dan volume total pori terbesar yaitu 120,57 m²/g dan 0,1369 cc/g serta rerata jejari pori terkecil yaitu 22,7 Å. Adsorben 3 merupakan adsorben dengan komposisi zeolit lebih dominan dibandingkan kaolin. Jika dibandingkan dengan zeolit alam dengan luas permukaan 48,45 m²/g, volume total pori 0,086cc/g dan rerata jejari pori 35,47Å, luas permukaan adsorben 3 meningkat sebesar 149% dan volume total pori hingga 59% disertai penurunan rerata jejari pori sekitar 36%. Penurunan rerata jejari pori pada Adsorben 3 menunjukkan bahwa adsorben 3 didominasi oleh mikropori. Adsorben 1 dengan komposisi kaolin tiga kali lebih banyak dibandingkan zeolit

menunjukkan hal sebaliknya. Adsorben 1 hampir tidak menunjukkan peningkatan volume total pori. Luas permukaan dan rerata jejari pori Adsorben 1 adalah 48,06 m²/g dan 39,98 Å. Luas permukaan Adsorben 1 meningkat sekitar 179% dan rerata jejari pori berkurang 62% dibandingkan dengan kaolin awal yang memiliki luas permukaan 17,21 m²/g dan rerata jejari pori 104,22 Å. Adsorben 2 memiliki luas 78,21 m²/g, volume total pori 0,122 cc/g dan rerata jejari pori 31,2 Å. Adsorben 2 menunjukkan peningkatan pada luas permukaan dan volume total pori serta penurunan rerata jejari pori.

Ukuran pori adsorben akan mempengaruhi proses penyerapan gas. Kaolin yang memiliki ukuran pori yang lebih besar dari zeolit akan cenderung mengadsorpsi banyak gas seperti CH₄, CO₂ dan H₂S. Karena itu, kaolin menjadi kurang selektif jika digunakan untuk pemurnian CH₄ dari CO₂ dan H₂S dalam biogas. Sedangkan zeolit dengan ukuran pori yang lebih kecil lebih berpotensi dalam menyerap gas. Jika diaplikasikan dalam biogas yakni untuk pemurnian CH₄, zeolit merupakan material yang sesuai karena zeolit lebih cenderung berinteraksi dengan gas CO₂ yang memiliki ukuran molekul lebih kecil dibandingkan CH₄ (diameter kinetik CO₂, $\sigma_{CO_2} = 3,30\text{\AA}$ dan $\sigma_{CH_4} = 3,80\text{\AA}$). Interaksi yang terjadi antara kaolin dan zeolit dengan gas CO₂ dan H₂S adalah interaksi van der Waals di mana adsorpsi terjadi berdasarkan polarisabilitas molekul gas. Zeolit yang memiliki luas permukaan lebih besar dibandingkan kaolin akan berinteraksi yang lebih besar dengan molekul-molekul gas sehingga gas CO₂ dan H₂S yang diadsorpsi menjadi lebih banyak dibandingkan kaolin yang memiliki luas permukaan kecil.



Gambar 3. Profil perubahan luas permukaan, rerata jejari pori, dan volume total pori adsorben kaolin capkala – zeolit deluminasi

Keterangan :

Adsorben 1, komposisi kaolin : zeolit dealuminasi = 3:1

Adsorben 2, komposisi kaolin : zeolit dealuminasi = 1:1

Adsorben 3, komposisi kaolin : zeolit dealuminasi = 1:3

SIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa telah berhasil dibuat adsorben dari kaolin capkala dan zeolit untuk mengadsorpsi gas CO₂. Karakterisasi pori pada adsorben menunjukkan bahwa adsorben dengan komposisi kaolin dan zeolit dealuminasi 1:3 memiliki luas permukaan dan volume total pori terbesar yaitu 120,57 m²/g dan 0,1369 cc/g serta rerata jejari pori terkecil yaitu 22,7 Å.

DAFTAR PUSTAKA

- Cosoli, P.; Ferrone, M.; Pricl, S. and Fermeglia, M., 2008, Hydrogen sulphide removal from biogas by zeolite adsorption Part I. GCMC molecular simulations, *Chemical Engineering Journal*, 145:86-92.
- Delgado, J.A.; Uguina, M.A.; Sotelo, J.L.; Ruiz, B. and Rosario, M., 2007, Carbon Dioxide/Methane Separation by Adsorption on Sepiolite, *Journal of Natural Gas Chemistry*, 16:235-243.
- Isabel, A.A.C.; Lopes, M.S.S.; Nunes, P.M.C. and Mota, J.P.B., 2008, Adsorption of natural gas and biogas components on activated carbon, *Separation and Purification Technology*, 62:281-296.
- Ismail dan Hanudin, E., 2005, Degradasi Mineral Batuan Oleh Asam – Asam Organik, *J. Ilm. Tan. Ling*, 5(1):1-17.
- Jestyssa, A.H. dan Maygasari, D.A., 2010, Optimasi Proses Aktivasi Katalis Zeolit Alam dengan Uji Proses Dehidrasi Etanol, Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro, Semarang.
- Krungleviciute, V.; Lask, K.; Migone, A.D.; Lee, J.Y. and Li, J., 2008, Kinetics and Equilibrium of Gas Adsorption on RPM1-Co and Cu-BTC Metal-Organic Frameworks: Potential for Gas Separation Applications, *AIChE*, 54(4):919-922.
- Rodiansono; Ariyantje, R.; dan Abdullah, 2007, Interkalasi Oligomer Hidroksil-kromium pada Kaolin Alam Tatakan, *Indo. J. Chem* 2008, 8(1):31-36.
- Roocyta, H., 2006, Pemanfaatan Zeolit Perlit untuk Bahan Katalis, Pusat Penelitian Geoteknologi LIPI, Bandung.
- Tagliabue, M.; Farruseng, D.; Valencia, S.; Aguado, S.; Ravon, U.; Rizzo, C.; Corma, A. and Mirodatos, C., 2009, Natural gas treating by selective adsorption: Material science and chemical engineering interplay, *Chemical Engineering Journal*, 155:553-566.
- Truong, L.V. and Abatzoglou, N., 2005, A H₂S reactive adsorption process for the purification of biogas prior to its use as a bionergy vector, *Biomass and Bioenergy*, 29:142-151.
- Ulfah, E.M.; Yasnur, F.A. dan Istadi, 2006, Optimasi Pembuatan Katalis Zeolit X dari Tawas, NaOH dan *Water Glass* dengan *Response Surface Methodology*, *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis*, 1(3):26-32.
- Wahono, S.K.; Maryana, R.; Kismurtono, S.; Nisa, K. dan Poeloengasih, C.D., 2010, Modifikasi Zeolit Lokal Gunung Kidul Sebagai Upaya Peningkatan Performa Biogas Untuk Pembangkit Listrik, Seminar Rekayasa Kimia dan Proses, ISSN:1411-4216.