

# Adsorpsi Logam Nikel dan Analisis Kristalinitas H-Faujasit dari Abu Layang Batubara

Sunardi

**Abstrak:** Sintesis H-Faujasit dari abu layang batu bara telah dilakukan sebagai upaya untuk meningkatkan kemampuan adsorpsi faujasit terhadap logam transisi dan situs asam dalam rangka pemanfaatannya sebagai katalis. Proses sintesis H-faujasit dilakukan dengan metode pertukaran ion menggunakan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1 M selama 24 jam yang dilanjutkan dengan proses kalsinasi untuk menghilangkan  $\text{NH}_3$ . Adsorpsi logam nikel dilakukan dengan metode pertukaran ion dengan variasi konsentrasi nikel nitrat 0,05; 0,1 dan 0,15 M selama 24 jam. Pengaruh proses pembentukan H-Faujasit dan pertukaran ion nikel pada struktur faujasit dikarakterisasi menggunakan spektrofotometer inframerah dan difraktometer sinar X. Kandungan logam nikel yang teradsorpsi ditentukan dengan spektrofotometer serapan atom. Hasil penelitian menunjukkan bahwa pembentukan H-Faujasit menyebabkan kerusakan struktur faujasit secara signifikan. Peningkatan konsentrasi larutan nikel nitrat yang dipergunakan dalam pertukaran ion menyebabkan peningkatan kandungan logam nikel dan penurunan kristalinitas faujasit awal.

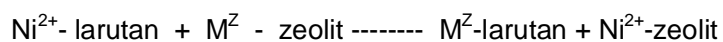
**Kata Kunci:** H-Faujasit, abu layang, nikel, kristalinitas

## PENDAHULUAN

Salah satu sifat zeolit yang khas adalah kemampuan untuk menukar kationnya dengan kation lain yang berbeda valensi maupun sifat kimianya jika berinteraksi dengan larutan yang mengandung senyawa logam. Kemampuan pertukaran ion bergantung kepada sifat kation, konsentrasi kation dalam larutan, jenis pelarut serta temperatur pada saat pertukaran ion

berlangsung (Augustine, 1996).

Pada dasarnya pertukaran ion adalah usaha untuk memodifikasi ukuran zeolit, membuat katalis menjadi homogen, menaikkan kestabilan serta kekuatan asam dari zeolit. Kation Ni dapat mengalami pertukaran kation dengan kation-kation lain yang terdapat dalam zeolit. Mekanisme pertukaran tersebut dapat dituliskan sebagai berikut:



M : kation-kation yang ada dalam zeolit

Z : muatan kation dalam zeolit

Dalam hal ini zeolit akan berperan sebagai pengemban logam

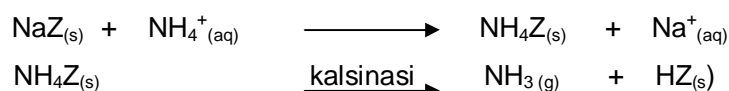
Ni yang baik karena mempunyai stabilitas termal yang tinggi, memiliki

rongga yang memungkinkan terjadinya adsorpsi, mempunyai kemampuan untuk mengikat logam Ni sebagai katalis dan luas permukaan besar.

Dalam industri katalis zeolit, pertukaran ion memegang peranan sangat penting. Untuk beberapa aplikasi katalitik, kehadiran situs asam Bronsted pada zeolit sangat

diperlukan untuk meningkatkan aktivitasnya. Sisi asam Bronsted pada zeolit dapat disiapkan dengan pertukaran ion menggunakan ammonium yang diikuti perlakuan panas atau dengan suatu kation polivalen yang juga diikuti dengan perlakuan panas membentuk zeolit terprotonasi ( H-zeolit ).

Pertukaran ion amonium :



Pertukaran ion polivalen :



Berdasarkan latar belakang permasalahan di atas, penelitian ini dititikberatkan pada pengaruh proses pembentukan H-Faujasit dan proses pertukaran ion nikel pada karakter zeolit tipe faujasit yang meliputi kandungan logam teremban dan perubahan kristalinitas faujasit.

## METODE PENELITIAN

Alat utama yang dipergunakan dalam penelitian ini antara lain autoklaf dengan bejana teflon 140 ml, hot plate, seker penukar ion, satu set alat kalsinasi. Alat yang dipergunakan untuk analisis adalah

spektrofotometer Inframerah merk FTIR 8201 PC, spektrometer sinar X merk Shimadzu XD-3H, spektrofotometer Serapan Atom merk AA 782 Nipon Jareel Ash. Beberapa bahan yang digunakan antara lain abu layang PLTU Suralaya, NaOH (E.Merck),  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  (E.Merck).

Sintesis zeolit dari abu layang dilakukan berdasarkan metode peleburan yang dilakukan oleh Yulianto (2000). Sebanyak 10 gram abu layang dan 14 gram NaOH dicampur dan dihomogenkan lalu dilebur pada suhu  $550^\circ\text{C}$  selama 60

menit. Hasil peleburan ditambah 100 ml akuades dan diaduk selama 12 jam dan dihidrotermal pada temperatur 90°C selama 24 jam. Fase padat hasil hidrotermal dipisahkan, dinetralkan dengan akuades dan dikeringkan pada suhu 90-120°C.

Faujasit dari abu layang direndam ke dalam larutan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1M dan dimasukkan ke dalam botol seker penukar ion lalu diputar selama 24 jam. Hasil dari proses tersebut dicuci dengan akuades hingga netral. Padatan hasil dikeringkan pada temperatur 125°C selama 6 jam dan dikalsinasi pada temperatur 300°C selama 4 jam untuk menghilangkan gas  $\text{NH}_3$  sehingga terbentuk H-Faujasit. Padatan yang terbentuk dikarakterisasi dengan spektrofotometer Inframerah dan difraktometer sinar X.

Pada kedua bentuk faujasit (Faujasit dan H-Faujasit) dilakukan pengembangan ion Nikel melalui metode pertukaran ion dengan variasi konsentrasi larutan nikel nitrat 0,05; 0,1 dan 0,15 M selama 24 jam. Padatan yang diperoleh dicuci dan dikeringkan pada temperatur 125°C dan dikarakterisasi dengan XRD dan analisis kandungan logam nikel dengan spektrofotometer serapan atom.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

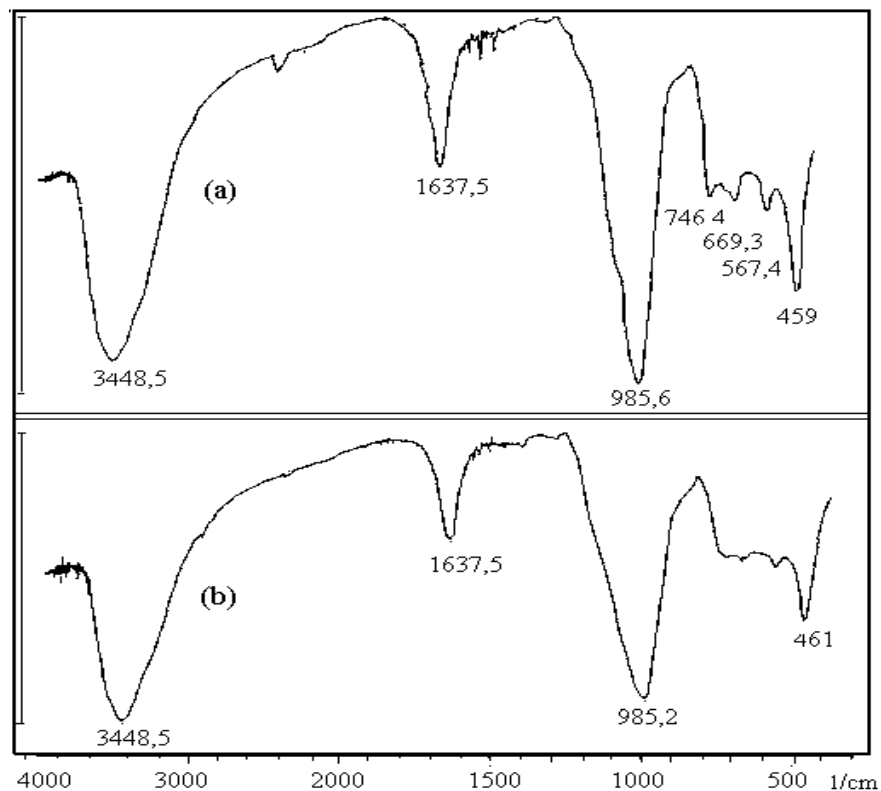
Karakterisasi H-faujasit hasil proses amoniasi dengan menggunakan spektrofotometer inframerah bertujuan untuk melihat perubahan unit pembangun kerangka faujasit setelah proses amoniasi tersebut. Rentang pengukuran spektra inframerah dilakukan pada daerah bilangan gelombang 4000-300  $\text{cm}^{-1}$ . Perbedaan spektrogram inframerah Faujasit dan H-Faujasit ditampilkan pada Gambar 1.

Secara umum, data spektrogram inframerah menunjukkan adanya penurunan ketajaman serapan pada H-Faujasit dibanding Faujasit awal. Serapan dengan bilangan gelombang 3448,5  $\text{cm}^{-1}$  dan 1637,5  $\text{cm}^{-1}$ , yang merupakan serapan vibrasi ulur gugus  $-\text{OH}$  serta vibrasi tekuk gugus  $-\text{OH}$  dari molekul  $\text{H}_2\text{O}$  mengalami penurunan ketajaman dikarenakan proses kalsinasi yang dilakukan akan mengusir molekul-molekul air terhidrat sehingga jumlah molekul air dalam pori faujasit tersebut berkurang.

Pita serapan pada bilangan gelombang sekitar 985  $\text{cm}^{-1}$  merupakan serapan akibat vibrasi asimetri eksternal tetrahedral mengalami pelebaran dan penurunan ketajaman pada H-Faujasit. Hal tersebut

disebabkan karena berkurangnya kristalinitas faujasit setelah proses amoniasi. Adanya kerusakan tersebut juga ditunjukkan dengan tidak munculnya serapan pada bilangan gelombang  $746,4 \text{ cm}^{-1}$  dan  $669,3 \text{ cm}^{-1}$  pada H-Faujasit yang menun-

jukkan tidak adanya vibrasi eksternal jalinan tetrahedra dan internal rentangan simetris T-O. Pita serapan yang makin melemah dan bahkan hilang pada H-Faujasit berhubungan dengan kristalinitas yang semakin turun (Balkus dan Kieu, 1991).



**Gambar 1.** Spektrogram inframerah (a) faujasit dan (b) H-Faujasit

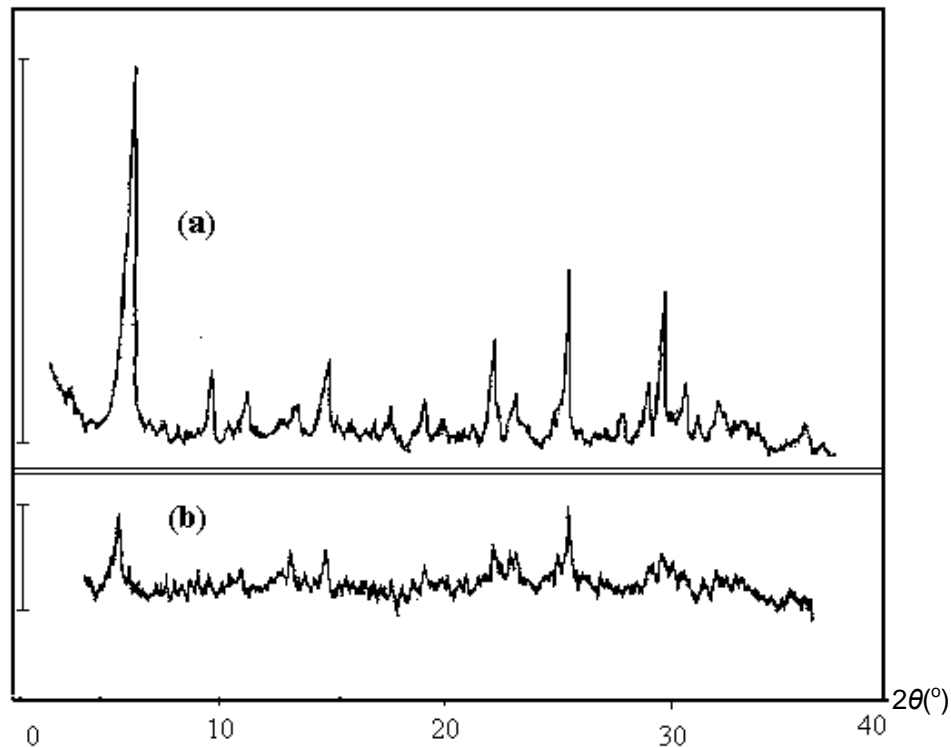
Pada daerah sekitar  $650\text{--}500 \text{ cm}^{-1}$  yang berhubungan dengan adanya cincin ganda (Flanigen et al., 1971), dimana Faujasit muncul pada bilangan gelombang  $567,4 \text{ cm}^{-1}$  tetapi menjadi tidak ada pada H-Faujasit. Serapan akibat vibrasi cincin-6 ganda yang menghubung-

kan sangkar sodalit (Balkus dan Kieu, 1991) tersebut menjadi tidak muncul diperkirakan karena rusaknya cincin-6 ganda. Kerusakan struktur juga ditunjukkan dengan berkurangnya ketajaman serapan pada bilangan gelombang sekitar  $459 \text{ cm}^{-1}$  yang merupakan pita

serapan vibrasi tekuk T-O, dimana menurut Flanigen et al.(1971) pita serapan tersebut karakteristik untuk zeolit tipe faujasit.

Difraksi sinar X merupakan metode yang cukup baik untuk karakterisasi zeolit secara kualitatif

maupun kuantitatif. Metode ini dapat memberikan informasi tentang kemurnian ataupun perubahan parameter kisi dari suatu kristal. Difraktogram dari faujasit sebelum dan sesudah proses amoniasi ditampilkan pada Gambar 2.



**Gambar 2.** Difraktogram sinar X (a) faujasit dan (b) H-Faujasit

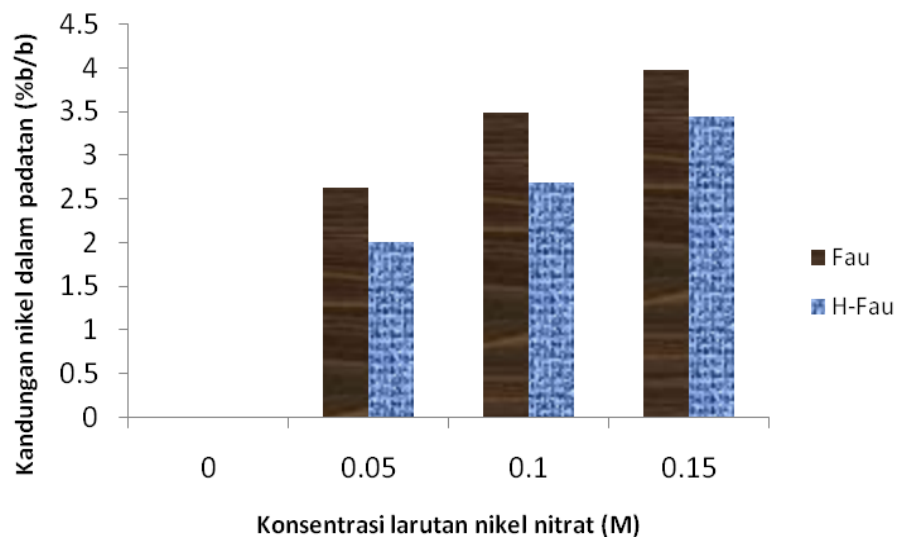
Pada difraktogram di atas terlihat bahwa terjadi perbedaan yang cukup signifikan antara faujasit dan H-Faujasit. Pada H-Faujasit terjadi penurunan intensitas puncak karakteristik milik faujasit yang menunjukkan terjadinya kerusakan struktur dari faujasit akibat proses

amoniasi menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1 M. Difraktogram terlihat kerusakan struktur yang terjadi relatif cukup besar yang ditunjukkan dengan penurunan intensitas puncak dari faujasit awal yang cukup besar.

Adanya kerusakan pada struktur H-Faujasit tersebut

diperkirakan karena masuknya kation  $\text{NH}_4^+$  yang menggantikan kation  $\text{Na}^+$  dalam pori faujasit. Jika ditinjau dari ukuran jari-jari kation yang saling menggantikan pertukaran ion menggunakan kation  $\text{NH}_4^+$  cukup efektif untuk menggantikan kation  $\text{Na}^+$  dalam pori zeolit (Barrer, 1981). Namun perbedaan ukuran jari-jari kation  $\text{NH}_4^+$  yang cukup besar (1,43 Å) dibanding ukuran jari-jari kation  $\text{Na}^+$  (0,98 Å) yang digantikan, menyebabkan rusaknya kisi kristal faujasit hasil sintesis dari

abu layang. Proses pertukaran kation  $\text{Na}^+$  oleh kation  $\text{NH}_4^+$  diperkirakan dapat memutuskan ikatan O-Si-O-Al terutama pada cincin-6 ganda (jari-jari = 1,1 Å) yang belum terlalu kuat dikarenakan masuknya kation yang lebih besar ke dalam pori faujasit melewati cincin-6 ganda tersebut, sehingga menyebabkan terjadinya kerusakan pada struktur faujasit yang ditunjukkan oleh spektogram inframerah maupun difraktogram sinar X di atas.



**Gambar 3.** Kurva kandungan nikel teremban dalam setiap faujasit

Penentuan kandungan ion nikel dalam faujasit dilakukan dengan metode spektrofotometri serapan atom. Kandungan nikel

yang terukur merupakan jumlah nikel total dalam faujasit setelah mengalami aktivasi melalui kalsinasi, oksidasi dan reduksi. Proses

pengembangan nikel ke dalam faujasit dilakukan dengan metoda pertukaran ion menggunakan larutan prekursor nikel nitrat dengan konsentrasi yang bervariasi, yaitu 0,05 M ; 0,1 M dan 0,15 M. Pertukaran ion dilakukan terhadap kedua bentuk zeolit dari abu layang yaitu Faujasit dan H-Faujasit dengan waktu pertukaran selama 24 jam pada temperatur kamar. Data kandungan ion nikel teremban dalam setiap faujasit disajikan dalam Gambar 3.

Gambar 3 tersebut terlihat bahwa kandungan ion nikel pada bentuk Faujasit dan H-Faujasit cenderung naik dengan kenaikan konsentrasi larutan nikel nitrat. Kenaikan tersebut relatif cukup tajam pada konsentrasi awal, namun kemudian kenaikannya relatif turun pada penambahan konsentrasi yang berikutnya. Hal tersebut terjadi diperkirakan karena semakin bertambah jenuhnya permukaan maupun pori faujasit terhadap ion-ion nikel yang teradsorb sebagai proses awal terjadinya pertukaran ion. Selain itu, zeolit juga mempunyai kemampuan pertukaran ion yang terbatas sehingga dengan jumlah berat zeolit yang sama pada saat penambahan konsentrasi

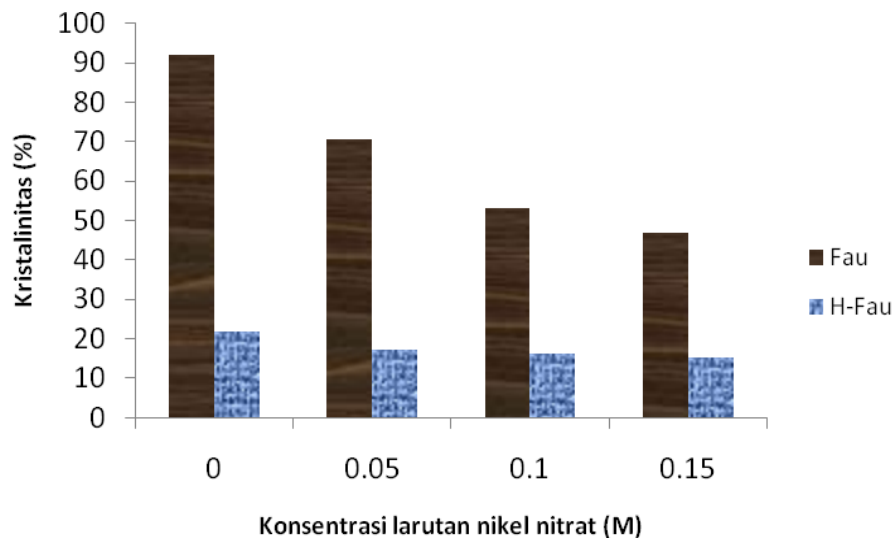
mencapai harga tertentu jumlah kation yang dapat dipertukarkan dengan kation asal akan cenderung konstan.

Gambar tersebut dapat diamati pula bahwa perubahan kandungan ion nikel dalam katalis Faujasit dan H-Faujasit mempunyai pola yang sama. Namun untuk bentuk H-Faujasit, kandungan nikel yang teremban cenderung lebih kecil jika dibandingkan dengan bentuk Faujasit pada konsentrasi larutan nikel nitrat yang sama. Terjadinya penurunan kandungan ion nikel yang teremban dalam H-Faujasit tersebut berkaitan dengan kerusakan struktur yang terjadi pada H-Faujasit akibat proses amoniasi menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1 M. Kerusakan struktur pada H-Faujasit, terutama pada cincin-6 ganda dan sangkar sodalit menyebabkan kristal yang dihasilkan kurang homogen sehingga proses pertukaran ion yang terjadi menjadi kurang optimal yang akhirnya akan menurunkan jumlah ion nikel yang dapat dipertukarkan.

Proses pengembangan terhadap kedua bentuk faujasit tersebut dilakukan dengan metode yang sama, yaitu dengan pertukaran ion selama 24 jam. Analisa untuk

mempelajari pengaruh pertukaran ion terhadap kristalinitas faujasit dilakukan dengan metode difraksi sinar X. Data kristalinitas diperoleh dengan cara membandingkan tinggi intensitas total sampel yang telah

mendapat perlakuan dengan intensitas total faujasit sintetik asal pada sudut difraksi yang karakteristik untuk faujasit pada rentang sudut difraksi pengukuran ( $2\theta = 3^\circ - 38^\circ$ ).



**Gambar 4.** Kurva perubahan kristalinitas faujasit setelah pertukaran ion

Data perubahan kristalinitas pada masing-masing faujasit setelah proses pertukaran ion dapat diamati pada Gambar 4 dapat diamati bahwa kerusakan kristal faujasit semakin tinggi dengan bertambahnya konsentrasi larutan nikel nitrat, atau dengan kata lain kenaikan kandungan nikel dalam faujasit akan diikuti oleh kenaikan kerusakan struktur kristal faujasit. Kerusakan struktur akibat pertukaran

ion nikel bergantung terhadap jumlah ion nikel yang dapat masuk ke dalam faujasit tersebut.

Terjadinya penurunan kristalinitas terutama pada Faujasit diperkirakan karena adanya interaksi antara kation  $\text{Ni}^{2+}$  dengan struktur faujasit. Kation  $\text{Ni}^{2+}$  yang dipertukarkan dengan kation lain dalam kerangka faujasit mempunyai perbedaan harga elektronegatifitas yang cukup besar sehingga mampu



berinteraksi dengan atom penyusun kerangka faujasit yang terikat sebagai  $\text{AlO}_4^-$ . Apabila dalam struktur faujasit kation  $\text{Ni}^{2+}$  yang masuk semakin banyak maka interaksi antara kation  $\text{Ni}^{2+}$  dengan struktur faujasit tersebut semakin kuat sehingga interaksi ini dapat mengakibatkan kerusakan pada struktur faujasit yang semakin besar. Tabel tersebut terlihat pula bahwa pola perubahan kristalinitas untuk kedua perlakuan yaitu Faujasit dan H-Faujasit mempunyai perbedaan cukup signifikan. Bentuk Faujasit mengalami penurunan kristalinitas yang tajam dengan adanya kenaikan konsentrasi larutan, sedangkan penurunan kristalinitas untuk H-Faujasit yang relatif kecil dan cenderung konstan dengan adanya kenaikan konsentrasi larutan nikel nitrat dikarenakan struktur H-Faujasit telah mengalami kerusakan yang cukup besar terlebih dahulu oleh proses amoniasi dengan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1 M sehingga sebagian besar menjadi fasa amorf. Hal tersebut mengakibatkan proses masuknya ion nikel dalam H-Faujasit kurang berpengaruh terhadap kristalinitas faujasit yang telah mengalami kerusakan tersebut..

## KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan, dapat disusun beberapa kesimpulan sebagai berikut:

1. Proses sintesis H-Faujasit dengan menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  1 M pada faujasit hasil sintesis dari abu layang menyebabkan penurunan kristalinitas secara signifikan.
2. Kenaikan konsentrasi larutan prekursor nikel nitrat meningkatkan kandungan nikel teremban dan menyebabkan penurunan kristalinitas H-Faujasit.

## DAFTAR PUSTAKA

- Augustine, R.L., 1996, *Heterogeneous Catalysis for the Synthetic Chemist*, First Edition, Marcel Dekker, Inc. New York
- Balkus, K.J.J., and Kieu, T.L., 1991, *The Preparation and Characterization of an X-type Zeolite*, *J. Chem. Ed.*, 68 (10), 875-877
- Barrer, R.M., 1982, *Hydrothermal Chemistry of Zeolite*, First Edition, Academic Press, New York
- Breck, D.W., 1974, *Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry and Use*, John Wiley and Sons Inc., New York
- Dyer, A., 1988, *An Introduction to Zeolite Molecular Sieves*, Wiley and Sons, New York.

- Flanigen, E. M., Khatami, H., Szymanski, H.A., 1971, Infrared Structural Studies of Zeolite Framework, Molecular Sieves Zeolite-1, American Society Advanced in Chemistry Series No. 102, 201-227
- Gates, B. C., Katzer, J. R., and Schuit, G. C. A., 1979, Chemistry of Catalytic Processes, First Edition, McGraw-Hill Book Company, New York
- Querol, X., Alastuey, A., Soler, A.L., and Plana, F., 1997, A Fast Method for Recycling Fly Ash : Microwave-Assisted Zeolite Synthesis, Environ. Sci. Technol., 31 (9), 2527-2533
- Shigemoto, N., Sugiyama, S., Hayashi, H. and Miyaura, K., 1995, Characterization of Na-X, Na-A and Coal Fly Ash Zeolite and Their Amorphous Precursors by IR, MAS NMR and XPS, Mater. Sci., 30, 5777-5783
- Weitkamp, J., 2000, Zeolites and Catalysis, Solid State Ionics, Elsevier Science No.131, 175-188
- Yulianto, I., 2000, Pengaruh Peleburan dengan Natrium Hidroksida pada Sintesis Faujasit dari Abu Layang, Skripsi, F.MIPA UGM, Yogyakarta