

PREPARASI DAN KARAKTERISASI KATALIS Cu/ZnO DENGAN SUPPORT KARBON AKTIF MENGGUNAKAN AKTIVATOR H₃PO₄ DAN ZnCl₂

Edwin Permana^{1*}, Icha Cristine¹, S.D. Sumbogo Murti², Fusia Mirda Yanti²

¹Program Studi Kimia Industri, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Jambi

²Pusat Teknologi Sumber Daya Energi dan Industri Kimia, Badan Pengkajian dan Penerapan Teknologi (BPPT), Gedung Energi 625 Klaster V, Kawasan PUSPIPTEK, Tangerang Selatan 15314

E-mail: edwinpermana86@unja.ac.id

ABSTRACT

This research discusses the preparation and characterization of Cu / ZnO / Activated Carbon catalyst with a ratio of 10: 10: 80% wt with the impregnation method. Activated carbon made from palm shells. The variations used are activators of activated carbon H₃PO₄ (AC1) and ZnCl₂ (AC2) to Cu / ZnO / AC1 and Cu / ZnO / AC2. The crystallinity characterization of the catalyst using XRD showed a higher crystallinity of Cu / ZnO / AC2, marked by high intensity, raising the presence of CuO at 2 θ pada angles of 35.3 °, intensity of 240 compared to Cu / ZnO / AC1 at 2 θ angles of 35.3 °, intensity of 110. Whereas characterization of chemical elements contained in the catalyst using XRF produced the highest Cu content at Cu / ZnO / AC1 of 45.8% while Cu / ZnO / AC2 of 41.8%.

Keywords: Activator, Activated Carbon, Catalyst, Palm Shell, Impregnation,

INTISARI

Pada penelitian ini mengkaji mengenai preparasi dan karakterisasi katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif dengan perbandingan 10:10:80%wt dengan metode impregnasi. Karbon aktif terbuat dari cangkang sawit. Variasi yang digunakan adalah pada aktivator karbon aktif H₃PO₄ (AC1) dan ZnCl₂ (AC2) menjadi Cu/ZnO/AC1 dan Cu/ZnO/AC2. Karakterisasi kristalinitas dari katalis menggunakan XRD menunjukkan kristalinitas Cu/ZnO/AC2 lebih tinggi ditandai dengan tingginya intensitas membuktikan adanya CuO pada 2 θ sudut 35,3° intensitasnya sebesar 240 dibandingkan Cu/ZnO/AC1 pada 2 θ sudut 35,3° intensitasnya sebesar 110. Sedangkan karakterisasi unsur kimia yang terkandung dalam katalis menggunakan XRF menghasilkan kadar Cu tertinggi pada Cu/ZnO/AC1 sebesar 45,8% sedangkan Cu/ZnO/AC2 sebesar 41,8%.

Kata Kunci: aktivator, cangkang sawit, impregnasi, katalis, karbon aktif,

PENDAHULUAN

Sebanyak 85% reaksi kimia pada industri sangat bergantung pada reaksi katalitik untuk dapat mempercepat reaksi kimia yang terjadi. Oleh karena itu sangat diperlukan perkembangan ilmu kimia dalam menemukan katalis baru yang memiliki kemampuan katalitik yang lebih baik. Dalam mempercepat proses reaksi suatu katalis berperan dalam menurunkan energi aktivasi (E_a). Energi aktivasi dikenal sebagai suatu energi minimum yang diperlukan dalam membentuk produk.

Umumnya kenaikan konsentrasi katalis yang digunakan dalam reaksi akan menaikkan kecepatan reaksi. Peranan katalis dalam suatu reaksi memungkinkan reaksi berlangsung lebih cepat dibandingkan reaksi tanpa penggunaan katalis dikarenakan Katalis berperan dalam membuat mekanisme reaksi

alternatif yang memiliki energi aktivasi yang lebih rendah dan memperbesar kemungkinan terjadinya tumbukan antara molekul reaktan, dikarenakan adanya proses adsorpsi reaktan pada sisi aktif katalis.

Logam Pd, Pt, Rh, Ru, Ir, Re, Ni, dan W merupakan metal yang mahal sehingga penggunaan dalam skala komersial kurang menguntungkan. Pengaruh dari rasio logam-logam tersebut terhadap selektivitas juga belum banyak dipelajari. Para peneliti pada umumnya menyarankan agar menggunakan Cu sebagai logam aktif. Permasalahan yang terpantau dari penggunaan Cu adalah bahwa Cu mudah terdeaktivasi pada suhu tinggi. Jika ini terjadi maka ketika digunakan dalam reaksi akan terbentuk produk samping yang tidak diinginkan. Sedangkan penggunaan logam lain seperti Pd harganya sangat mahal

sehingga kurang ekonomis. Padahal diharapkan katalis yang dikembangkan selain murah, mudah diperoleh, memiliki stabilitas tinggi, dan juga dapat memproduksi hidrogen setinggi-tingginya dan menekan produk samping yang tidak diinginkan (Amphlett *et al.*, 1988; Agrell *et al.*, 2001).

Metode pembuatan katalis sangat beragam dan masing-masing katalis dapat dihasilkan melalui rute yang berbeda. Persiapan biasanya melibatkan beberapa langkah yang berurutan. Banyak katalis berbasis logam dan oksida yang umumnya disintesis dengan tahapan proses absorpsi, pengeringan, kalsinasi, aktivasi. Sifat-sifat katalis sangat berpengaruh terhadap sisi aktif yang berperan sebagai media reaksi antar prekursor (Ariyanti, 2012).

Katalis heterogen paling banyak dikembangkan dewasa ini karena penggunaannya yang lebih efektif dan efisien. Pada dasarnya prinsip sintesis katalis heterogen dengan deposisi atau pendispersian logam aktif pada material support yang mempunyai luas permukaan yang tinggi. Tujuan penggunaan support adalah untuk mendapatkan penyebaran material katalis yang optimum sehingga luas permukaan reaksi lebih besar. Cara ini dapat menghasilkan katalis dengan efisiensi yang tinggi, luas permukaan spesifik logam maksimum, menaikkan stabilitas termal sehingga waktu hidup katalis menjadi lebih lama, dan menghasilkan katalis yang mudah diregenerasi. Tetapi pada beberapa reaksi katalitik, support diharapkan dapat memiliki aktifitas katalitik sehingga baik support maupun logam aktif dapat mempercepat reaksi (Richardson, 1989).

Logam golongan transisi diketahui memiliki banyak aktifitas katalitik yang bermanfaat dalam pengelolaan lingkungan, seperti pengurangan pencemaran udara gas CH₄, gas CO, ataupun dalam reaksi fotokatalitik degradasi berbagai zat warna dan inhibisi mikroba (Li *et al.*, 2007; Fidalgo *et al.*, 2010). Penggunaan katalis logam transisi secara luas akan memerlukan banyak dana, terutama untuk luas permukaan yang besar. Luas permukaan merupakan salah satu faktor penting dalam reaksi katalitik, oleh karena itu penelitian saat ini banyak dilakukan untuk mengefektifkan reaksi katalitik logam transisi tersebut dengan cara memperluas bidang reaksi (sisi aktif) dengan cara deposisi pada berbagai jenis support berpori.

Ada beberapa macam metode preparasi untuk menempatkan fasa aktif logam ke dalam support. Aktivitas dan selektivitas suatu katalis

sangat bergantung pada metode preparasi dan karakteristik dari support. Metode preparasi ini terdiri atas 4 macam yaitu metode impregnasi, pertukaran ion, copresipitasi, dan deposisi. Dua metode yang paling umum digunakan adalah impregnasi dan pertukaran ion, dimana kedua metode ini digunakan untuk mendapatkan katalis bimetal. Prinsip dasar metode impregnasi adalah dengan memasukan katalis logam secara paksa ke dalam pori-pori support. Sedangkan metode pertukaran ion terjadi pertukaran ion-ion yang terdapat pada situs aktif support dengan katalis logam. Salah satu metode yang banyak dilakukan dalam preparasi katalis adalah metode impregnasi, dikarenakan proses sintesis lebih praktis, keberhasilan proses lebih besar, dan menghasilkan limbah yang sedikit (Munnik *et al.*, 2015).

Impregnasi secara luas memiliki pengertian proses penjujukan zat tertentu secara total. Penjujukan ini dilakukan dengan mengisi pori-pori support dengan larutan logam aktif melalui adsorpsi logam, yaitu dengan merendam support dalam larutan yang mengandung logam aktif. Dalam hal ini, support memiliki fungsi sebagai penyedia permukaan yang luas agar lebih mudah menebarkan situs aktif, sehingga permukaan kontakannya lebih luas dan efisien. Impregnasi dilakukan jika pada support tidak terdapat anion atau kation yang dapat dipertukarkan dengan fasa aktif. Penggunaan metode impregnasi juga dipertimbangkan dari faktor biaya. Untuk larutan garam yang mahal dapat dilakukan impregnasi kering. Sedangkan larutan garam yang lebih murah dapat dilakukan impregnasi basah atau pertukaran ion. Kelebihan metode impregnasi basah adalah dapatnya diatur pengontrolan banyak logam yang akan diimpregnasikan. Prekursor fasa aktif tidak disaring setelah proses perendaman dan pemanasan, tetapi langsung dilakukan pengeringan. Tetapi pada impregnasi basah logam yang berikatan pada support hanya terjebak didalam pori sehingga dapat mudah terelusi (Munnik *et al.*, 2015).

Prinsip impregnasi adalah memasukkan katalis logam secara paksa ke dalam rongga-rongga support dengan cara merendam support ke dalam prekursor logam aktif disertai dengan pengadukan dan pemanasan. Impregnasi juga merupakan prosedur yang umum untuk membuat katalis bimetal. Katalis bimetal dapat dibuat dengan ko-impregnasi yaitu kedua garam logam dimasukkan dalam waktu yang sama atau dengan impregnasi terpisah yaitu garam logam pertama dimasukkan kemudian diikuti garam logam

ke-dua. Dalam ko-impregnasi, letak dan sifat logam dalam pengemban tergantung pada jenis garam prekursor yang digunakan dan kecenderungan untuk membentuk paduan dua komponen (Wang *et al.*, 2009).

Penggunaan metode impregnasi juga dipertimbangkan dari faktor biaya. Untuk larutan garam yang mahal dapat dilakukan impregnasi kering. Sedangkan larutan garam yang lebih murah dapat dilakukan impregnasi basah atau pertukaran ion. Kelebihan metode impregnasi basah adalah dapatnya diatur pengontrolan banyak logam yang akan diimpregnasikan. Prekursor fasa aktif tidak disaring setelah proses perendaman dan pemanasan, tetapi langsung dilakukan pengeringan. Tetapi pada impregnasi basah logam yang berikatan pada support hanya terjebak didalam pori sehingga dapat mudah terelusi (Munnik *et al.*, 2015).

Menurut Munnik *et al.* (2015), impregnasi logam kedalam support dilakukan dengan penambahan senyawa support kedalam larutan dan dilakukan pengadukan dengan pemanasan dibawah titik didih pelarut yang digunakan hingga terbentuk bubur (slurry) dengan variasi waktu dimana semakin lama waktu pencampuran diharapkan semakin banyak logam yang mengisi pori-pori support.

Campuran selanjutnya dikeringkan untuk menghilangkan molekul pelarut sehingga garam logam dapat mengendap pada permukaan pori support. Produk dipanaskan dalam oven yang dapat dialiri gas berupa udara, oksigen, nitrogen atau gas lain tergantung kebutuhan. Temperatur pada proses pengeringan biasanya lebih tinggi dari titik didih pelarut (air: 100-120°C). Penghilangan air akan menyebabkan kejenuhan prekursor dan kristalisasi yang akan berinteraksi dengan support.

Tahapan selanjutnya yang paling penting adalah proses kalsinasi. Proses inibertujuan mengubah kompleks logam menjadi oksidanya, meningkatkan stabilitas mekanik, serta menghilangkan kadar air yang tersisa (kristal air hidrat). Keseluruhan proses umumnya terjadi dalam membentuk katalis terimpregnasi. Kemudian aktivasi untuk meningkatkan kinerja katalis.

Karbon aktif terbuat dari cangkang sawit. Pada prinsipnya, pengolahan arang menjadi arang aktif adalah proses untuk membuka pori-pori arang agar menjadi lebih luas, yaitu dari luas 2 m²/g pada arang menjadi 300 – 2000 m²/g pada arang aktif. Arang aktif dapat dibedakan dari arang berdasarkan sifat pada

permukaannya. Permukaan pada arang masih ditutupi oleh deposit hidrokarbon yang menghambat keaktifannya, sedangkan pada arang aktif permukaannya relatif telah bebas dari deposit dan mampu mengadsorpsi karena permukaannya luas dan pori-porinya telah terbuka (Gomez-Serrano *et al.*, 2003 dalam Lempang, 2009).

Secara umum, ukuran pori arang aktif dibagi ke dalam tiga kategori, yaitu makropori, mesopori dan mikropori. Makropori memiliki diameter 1000 – 100.000 Å, mesopori memiliki diameter 100 – 1000 Å, sedangkan mikropori memiliki diameter kurang dari 100 Å (Roy, 1995). Pada pembuatan arang aktif, mutu produk yang dihasilkan sangat tergantung dari bahan baku yang digunakan, bahan pengaktif, suhu dan cara pengaktifannya (Hartoyo *et al.*, 1990). Arang aktif dapat dibuat dari bahan tumbuhan seperti kayu, biji-bijian, lumut, dan tempurung buah-buahan, maupun bahan-bahan polimer sintetik seperti rayon, poliakrilonitril, dan polivinil klorida.

Karbon aktif dapat dipreparasi dari berbagai bahan dasar, diantaranya kulit buah coklat, sekam padi, pelapah jagung, tempurung kelapa, tempurung kelapa sawit dan lain-lain. Karbon aktif adalah arang yang telah mengalami perubahan sifat fisika dan kimia karena telah melalui proses aktivasi sehingga daya serap dan luas permukaannya meningkat (Maryanto *et al.*, 2009).

Sudrajat dan Soleh (1994) menjelaskan bahwa pembuatan arang aktif dilakukan dalam dua tahap, yaitu proses karbonisasi atau destilasi kering yang dilanjutkan dengan tahap pengaktifan atau pengeluaran senyawa yang menutupi rongga dan pori-pori arang aktif dengan cara dehidrasi menggunakan garam jenuh seperti MgCl₂, ZnCl₂, CaCl₂, NaOH, H₃PO₄, dan lain-lain. Selanjutnya, untuk membebaskan unsur karbon dari ikatan dengan unsur lain, terutama hidrogen dan oksigen, dilakukan oksidasi lemah dengan uap air pada suhu tinggi (1000°C).

METODE PENELITIAN

Alat dan Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah cangkang kelapa sawit, larutan H₃PO₄ 85%, Larutan ZnCl₂ 7,5%, aquades, garam Cu(NO₃)₂·3H₂O, Zn(NO₃)₂·4H₂O, Na₂CO₃ dan larutan Amonia.

Peralatan yang digunakan untuk mendukung penelitian ini adalah cawan, gelas ukur, timbangan analitik, oven, furnace (Muffle Furnace Carbolite), desikator, pH meter,

kertas indikator, kertas saring, labu ukur 500 mL, erlenmeyer 150 mL, mortal dan alu, ayakan 200 mesh, magnetic stirrer (Thermo Scientific Cimarec), termometer, XRF (Rigaku-NEXCG) dan XRD (Rigaku Miniflex-600).

Preparasi Larutan Aktivasi dan Sampel

Larutan aktivator yang digunakan adalah larutan H₃PO₄ dan ZnCl₂ masing-masing 9% dan 7,5%. 52,94 mL Larutan H₃PO₄ 85% diencerkan dengan aquades dengan total 500 mL dalam labu ukur 500 mL dan 37,50 gram ZnCl₂ dilarutkan dalam aquades dengan total larutan 500 mL dalam labu ukur 500 mL. Larutan Na₂CO₃ pH 10 dengan melarutkan 0,13 gram garam Na₂CO₃ dalam 100 mL aquades dalam labu takar 100 mL.

Sampel cangkang kelapa sawit diperoleh dari PTPN IV Sumatera Utara. Cangkang kelapa sawit sudah dibersihkan dan dikeringkan menjadi Palm Kernel Shell. Cangkang kelapa sawit dimasukkan dan ditimbang sebanyak setengah cawan yaitu 350,46 gram. Dikeringkan dalam oven selama 17 jam dengan suhu 45°C. setelah dikeringkan, didinginkan di desikator hingga sama dengan suhu ruang dan ditimbang kembali.

Pembuatan Karbon Aktif dari Cangkang Kelapa Sawit

Pembuatan karbon aktif terbagi dalam 3 tahapan sesuai metode Masitoh dan Sianita (2013), yaitu sebagai berikut:

- Dehidrasi: Cangkang dihilangkan kadar air dengan dipanaskan dalam furnace selama 1 jam dengan cawan terbuka pada suhu 105°C.
- Karbonisasi: Cawan ditutup dan dikarbonisasi selama 3 jam dalam furnace pada suhu 550°C. Cangkang kelapa sawit kemudian didinginkan dalam desikator dan ditimbang kembali.
- Aktivasi: 40 gram karbon dimasukkan ke dalam masing-masing 2 gelas kimia 500 mL kemudian ditambahkan masing-masing gelas kimia (AC1) larutan aktivator H₃PO₄ 9% dan gelas kimia (AC2) larutan aktivator ZnCl₂ 7,5% dengan volume yang sama yaitu sebanyak 400 mL. Kemudian direndam selama 24 jam dan disaring dengan kertas saring sambil dicuci dengan aquades hingga mencapai pH netral. Dikeringkan karbon aktif dalam oven selama 20 jam pada suhu 105°C.

Pengukuran volume pori

Pengukuran volume pori metode Tsani

(2011), berdasarkan jumlah air yang dapat diserap oleh support. Pengukuran volum pori support dilakukan dengan prosedur sebagai berikut:

- Merendam karbon aktif dengan aquades hingga gelembung-gelembung udara yang ada hilang
- Meniriskan karbon aktif yang telah direndam kemudian mengeringkan permukaan karbon aktif
- Menimbang berat basah karbon aktif setelah permukaannya dikeringkan
- Melakukan pengeringan kembali di dalam oven dengan temperatur 105°C hingga didapatkan berat kering konstan. Penimbangan dilakukan setiap 15 menit

Impregnasi Katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif

Larutan impregnasi katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif dengan bobot massa masing-masing 10:10:80 %wt basis massa katalis 20 gram. Ditimbang Cu(NO₃)₂·3H₂O sebanyak 7,6048 gram dan Zn(NO₃)₂·4H₂O sebanyak 7,9964 gram dan dicampurkan dalam gelas kimia 100 mL. Ditambahkan aquades sebanyak 10 mL dinamakan larutan 1 dan diaduk sampai larut sempurna dengan magnetic stirrer. Karbon aktif ditimbang sebanyak 16 gram ditambah larutan Na₂CO₃ sebanyak 40 mL pH 10 dan diaduk dengan magnetic stirrer selama 1 jam. Selama pengadukan, dijaga pH konstan tetap 10 dengan penambahan larutan Na₂CO₃ dengan pengukuran pH setiap 15 menit dinamakan larutan 2. Larutan 1 dan 2 dicampurkan dan diaduk menggunakan magnetic stirrer selama 2 jam pada suhu 80°C kemudian dicek suhu menggunakan termometer. Setelah diaduk, didiamkan selama 24 jam. Kemudian, dikeringkan pada oven pada suhu 70°C hingga kering dan langsung dikalsinasi pada furnace selama 3 jam pada suhu 350°C. Katalis dengan menggunakan karbon aktif aktivator H₃PO₄ diberi nama Cu/ZnO/AC1 dan yang menggunakan aktivator ZnCl₂ diberi nama Cu/ZnO/AC2.

Karakterisasi Katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif

a. XRD (X-Ray Diffraction)

Sampel dihaluskan sebelum pengujian dan dipreparasi pada plat sampel. Uji kristalinitas ini dilakukan dengan menggunakan alat instrumentasi XRD menggunakan radiasi Cu pada tegangan 40 kV dan arus 25 mA dengan rentang sudut 5-90°. Difraktogram yang dihasilkan akan memberikan informasi mengenai fase kristalin karbon sebelum diaktivasi, AC1, AC2, Cu/ZnO/AC1 dan Cu/ZnO/AC2.

b. XRF (X-Ray Fluorescence)

Sampel uji dihaluskan sebelum pengujian dan dipreparasi pada plat sampel. Uji senyawa unsur kimia yang terkandung dalam katalis ini diuji dengan sumber tegangan 1200 volt menggunakan radiasi Cu pada tegangan 40Kv dan arus 25 mA. Difraktogram yang dihasilkan akan memberikan informasi mengenai kandungan unsur kimia dalam sampel karbon sebelum diaktivasi, AC1, AC2, Cu/ZnO/AC1 dan Cu/ZnO/AC2.

Analisis Data

Menurut Suharto *et al.* (2016), persentase bobot susut merupakan persentase berkurangnya berat sampel setelah mengalami perlakuan pengeringan dan pemanasan, dihitung dengan rumus:

$$\% \text{Bobot susut} = \frac{\text{bobot awal} - \text{bobot akhir}}{\text{bobot awal}} \times 100\%$$

Menurut Tsani (2011), pengukuran volume pori total merupakan jumlah uap yang teradsorb pada tekanan relatif yang mendekati satu, dengan asumsi bahwa pori-pori tersebut kemudian diisi dengan adsorbat cair.

Volume pori = (Berat karbon aktif basah – Berat karbon aktif kering) / Berat karbon aktif basah.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembuatan Karbon Aktif dari Cangkang Kelapa Sawit

Cangkang kelapa sawit merupakan komponen paling keras dari semua bagian yang terdapat pada tanaman kelapa sawit dan bahan bakar padat kelas tinggi yang dapat diperbaharui untuk pembakaran, baik dalam uap batubara atau dibakar pada biomassa pembangkit tenaga listrik, yang biasanya dicampur dengan biomassa tingkatan lainnya, seperti potongan kayu. Menurut Nurmala dan Haryoto (1998), cangkang kelapa sawit termasuk bahan berlignoselulosa yang berkadar karbon tinggi dan mempunyai berat jenis yang lebih tinggi dari pada kayu yang mencapai 1,4 gr/cm³, dimana semakin besar berat jenis bahan baku maka daya serap arang aktif yang dihasilkan akan semakin besar, karakteristik ini memungkinkan bahan tersebut baik untuk dijadikan arang aktif.

a. Dehidrasi dan Karbonisasi

Cangkang kelapa sawit yang digunakan adalah cangkang kelapa sawit yang telah kering dan dihancurkan sehingga karbon aktif yang dihasilkan berbentuk granular.

Cangkang kelapa sawit ditimbang dengan berat akhir adalah 337,9 gram. Bobot susut adalah sebesar 12,56 gram atau pengurangan sebesar 3,58% dari berat awal. Penurunan massa bahan disebabkan karena terjadinya pemanasan yang mengakibatkan dekomposisi bahan atau terlepasnya senyawa yang mudah menguap atau *volatile matter*. *Volatile matter* terdiri dari metan, senyawa hidrokarbon, hidrogen dan nitrogen.

Berikut data penimbangan berat cangkang kelapa sawit proses pengeringan suhu 45°C adalah sebagai berikut:

Tabel 1. Data Penimbangan berat cangkang kelapa sawit sebelum dan sesudah Keterangan :

m _{cangkang1} (gram)	m _{cangkang2} (gram)	%Bobot Susut
350,46	337,90	3,58%

m_{cangkang1}= Massa Cangkang Kelapa Sawit sebelum pengeringan (gram)

m_{cangkang2}= Massa Cangkang Kelapa Sawit sesudah pengeringan (gram)

Berikut adalah data penimbangan berat cangkang kelapa sawit sebelum dan sesudah karbonisasi dan dehidrasi dalam furnace:

Tabel 2. Data Penimbangan berat cangkang kelapa sawit sebelum dan sesudah karbonisasi

Cawan	m _{cangkang1} (gram)	m _{cangkang2} (gram)	%Bobot Susut
1	108,65	35,21	21,71%
2	112,66	37,47	22,22%
3	116,96	39,91	22,77%
Total	338,27	112,59	66,71%

Keterangan :

m_{cangkang1}= Massa Cangkang Kelapa Sawit sebelum karbonisasi (gram)

m_{cangkang2}= Massa Cangkang Kelapa Sawit sesudah karbonisasi (gram)

Setelah proses dehidrasi dengan suhu 105°C dan karbonisasi pada suhu 550°C menggunakan furnace, bobot susut sebesar 225,68 gram atau pengurangan sebesar 66,71% dari bobot awal. Pengarangan atau karbonisasi merupakan pembakaran biomassa tanpa adanya kehadiran oksigen (Sutiyono, 2002). Sehingga yang terlepas hanya bagian *volatile matter*, sedangkan karbonnya tetap karena karbon tidak akan terjadi pembakaran jika tanpa oksigen (Tirono dan Sabit, 2011).

Menurut Keenan (1991), teori molekul kinetik dengan ditambahkan energi kalor ke

suatu zat, energi itu digunakan untuk mengalahkan gaya-gaya tarik yang mengikat partikel-partikel. Semakin tinggi energi kalor yang diberikan maka akan semakin kuat energi untuk mengalahkan gaya-gaya tarik antar molekul. Pada komposisi tempurung kelapa lignin, selulosa, dan hemiselulosa akan mengalami dekomposisi atau pelepasan ikatan untuk membentuk senyawa. Dari dekomposisi bahan tersebut akan terjadi penurunan massa bahan dengan semakin tingginya suhu karbonisasi. Menurut Nasution dan Rambe (2011), pada saat terjadinya proses pemanasan dengan temperatur 500°C unsur/senyawa tersebut sebagian menguap, berdasarkan kevolatilan dari pada unsur/senyawa tersebut. Seperti senyawa etanol benzen dan kadar air yang ada pada cangkang sawit akan mulai menguap pada temperatur 100°C, sedangkan senyawa holoselulosa dan selulosa akan berubah menjadi karbon berwarna hitam. Penyusutan bobot cangkang kelapa sawit menunjukkan bahwa kandungan air dalam cangkang kelapa sawit keluar terlebih dahulu selama proses dehidrasi dan karbonisasi. Kandungan air yang kecil ini dapat meningkatkan kualitas dari daya adsorpsi karbon aktif (Suhendrawati *et al.*, 2013).

Menurut Sudrajat dan Salim (1994) dalam Kurniati (2008), pada suhu 100-120°C terjadi penguapan air dan sampai suhu 270°C mulai terjadi peruraian selulosa, pada suhu 270-310°C reaksi eksotermik terjadi berlangsung dimana terjadi peruraian selulosa secara intensif menjadi larutan piroligant, gas kayu dan sedikit tar, pada suhu 310-500°C terjadi peruraian lignin, dihasilkan lebih banyak tar sedangkan larutan pirolignat menurun, gas CO₂ menurun sedangkan gas CO, CH₄ dan H₂ meningkat, dan pada suhu 500-1000°C merupakan tahap dari pemurnian arang atau karbon.

b. Aktivasi secara Kimia

Aktivasi menggunakan masing-masing 40 gram cangkang kelapa sawit yang direndam dalam larutan aktivator H₃PO₄ dan ZnCl₂ dengan konsentrasi masing-masing 9% dan 7,5% selama 24 jam. Perendaman dengan bahan aktivasi ini dimaksudkan untuk menghilangkan atau membatasi pembentukan lignin, karena adanya lignin dapat membentuk senyawa tar.

Waktu perendaman untuk bermacam-macam zat tidak sama. Misalnya tempurung kelapa dengan aktivator ZnCl₂ direndam selama 20 jam (Tutik dan Faizah, 2001) dan H₃PO₄ lamanya perendaman sekitar 12-24 jam (Sudrajat *et al.*, 1994). Kemampuan

adsorpsi karbon aktif dari hasil aktivasi dengan larutan kimia H₃PO₄ cenderung meningkat sesuai dengan peningkatan konsentrasi larutan kimia aktivasi, hal ini dikarenakan bahwa semakin tinggi konsentrasi larutan kimia aktivasi maka semakin kuat pengaruhnya larutan kimia tersebut mengikat senyawa-senyawa tar sisa karbonisasi untuk keluar melewati mikro pori-pori dari cangkang kelapa sawit (Kurniati, 2008). Semakin tinggi konsentrasi larutan ZnCl₂ maka semakin tinggi kemampuan karbon aktif dalam mengadsorpsi suatu gas. Jadi, karbon teraktivasi ZnCl₂ 10% lebih tinggi penyerapannya dibanding karbon teraktivasi lainnya.

Pada proses penyaringan dan pencucian hingga pH netral, karbon aktif dengan aktivator H₃PO₄ memiliki pH yang lebih asam dibanding ZnCl₂, yaitu pH 2 untuk H₃PO₄ dan pH 5 untuk ZnCl₂. Pada proses aktivasi yang mempergunakan garam mineral, asam dan basa sebagai aktivator, dimana aktivator ini ditambahkan pada bahan dasar sebelum dilakukan proses pembakaran atau karbonisasi. Maka pada saat proses karbonisasi dilakukan aktivator tersebut akan mengikat karbon yang baru berbentuk dengan gaya adhesi sehingga bila aktivator tersebut dicuci dengan air maka akan diperoleh karbon yang mempunyai permukaan lebih terbuka sehingga mempunyai gaya adhesi yang lebih besar (Farid *et al.*, 1981).

Berikut tabel data penimbangan berat karbon aktif sesudah kalsinasi:

Tabel 3. Data Penimbangan Berat Karbon Aktif sesudah Kalsinasi

Karbon Aktif	m _{karbon} (gram)
AC1	38,11
AC2	38,15

Keterangan:

AC1 = Karbon Aktif aktivator H₃PO₄

AC2 = Karbon Aktif aktivator ZnCl₂

Data penimbangan massa karbon aktif setelah diaktivasi dan dikalsinasi juga mengalami penyusutan dikarenakan adanya sebagian arang (karbon) berubah menjadi abu, gas CO, H₂, air dan gas-gas hidrokarbon lainnya yang mudah menguap.

Pengukuran Volume Pori

Pengukuran volume pori menggunakan metode pengukuran jumlah air yang diuapkan setelah dilakukan perendaman pada karbon aktif sama dengan volume pori yang ada pada karbon aktif untuk menjadi dasar jumlah larutan impregnasi basah pada pembuatan katalis. Pengeringan ini bertujuan untuk

menghilangkan air yang terperangkap dalam pori-pori katalis sehingga proses difusi larutan impregnan dapat berlangsung dengan efektif. Massa karbon aktif yang paling konstan sebagai massa kering dan massa sebelum dilakukan pengeringan sebagai massa basah. Volume pori adalah perbandingan selisih massa basah dan kering terhadap massa kering karbon aktif. Pengukuran volume pori ini disebut dengan screening awal dan analisa lanjutan untuk volume pori total dan luas permukaan katalis menggunakan metode BET dengan adsorpsi gas N_2 (Tsani, 2011).

Tabel 4. Data Screening Volume Pori AC1 (aktivator H_3PO_4)

Waktu (jam)	Cawan Kosong (gram)	Cawan karbon (gram)	m_{Karbon} (gram)
0		66,0555	12,5927
1		63,2455	9,7827
1,25		63,1414	9,6786
1,5	53,4628	63,0886	9,6258
1,75		63,0443	9,5815
2		63,0421	9,5793
24		62,9957	9,5329

Berdasarkan data screening volume pori AC1, berat konstan didapatkan pada berat 9,5329 gram dan didapatkan volume pori adalah 0,3209 m^3/g . Pada penelitian ini, digunakan volume larutan impregnan sebesar 30 kali volum pori support katalis. Hal ini dikarenakan volum larutan impregnan sebesar 30 kali volum pori dapat membasahi logam aktif katalis secara merata dengan basis massa katalis 20 gram.

Tabel 5. Data Screening Volume Pori AC2 (aktivator $ZnCl_2$)

Waktu (jam)	awan Kosong (gram)	awan + karbon (gram)	m_{Karbon} (gram)
0		62,1434	1,9614
1		60,3106	0,1286
1,25		60,0403	9,8610
1,5	50,1820	59,9627	9,7807
1,75		59,7467	9,5647
2		59,7069	9,5249
24		59,6571	9,4751

Berdasarkan data pengukuran volume pori AC2, berat konstan yang diperoleh adalah 9,4751 dengan selisih sedikit dengan berat sebelumnya. Maka, volume pori dari AC2 adalah 0,2624 m^3/g dan digunakan volum

larutan impregnan sebesar 30 kali volum pori support katalis dengan basis massa katalis 20 gram. Maka, volum larutan impregnan aktivator H_3PO_4 adalah 9,627 mL sedangkan karbon aktif aktivator $ZnCl_2$ sebanyak 7,872 mL. Volume pori dari H_3PO_4 lebih besar dibandingkan dengan volume pori $ZnCl_2$ sehingga volume larutan impregnan yang dibutuhkan karbon aktif dengan aktivator asam fosfat lebih banyak dibandingkan dengan karbon aktif dengan aktivator seng klorida.

Impregnasi Katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif

Pembuatan katalis dilakukan dengan impregnasi basah dimana logam Cu dipadukan dengan promotor ZnO. Impregnasi karbon aktif dengan logam Cu dan ZnO basis massa 20 gram perbandingan $Cu(NO_3)_2 \cdot 3H_2O$: $Zn(NO_3)_2 \cdot 3H_2O$: Karbon Aktif adalah 10:10:80 (%wt). Perbandingan katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif yang memiliki konversi CO dan %yield paling tinggi karena mampu 10%wt Cu mampu mengkonversikan syngas menjadi metanol, 10%wt ZnO sebagai promotor mampu mencegah Cu sintering (Vantya, 2017).

Pada impregnasi katalis dilakukan pengaturan pH pada support katalis yang menjadi basa dengan larutan Na_2CO_3 pH 10 dan menjadi asam sekitar pH 4 -5 ketika dicampurkan dengan larutan Cu/ZnO. Salah satu faktor yang mempengaruhi hasil uji aktivitas katalis adalah pH. Perlakuan pengasaman membentuk fungsi asam stabil termal pada permukaan karbon aktif sehingga mempengaruhi konversi CO dan selektivitas metanol yang dihasilkan (Liakakou *et al.*, 2014).

Pada dua jenis aktivator yang digunakan, AC1 (aktivator H_3PO_4) memiliki pH yang lebih asam dibandingkan AC2 (aktivator $ZnCl_2$). Pengasaman pada karbon aktif menyebabkan pembentukan kelompok-kelompok fungsional asam, seperti -COOH dan -OH) pada permukaannya dan setelah kalsinasi pada suhu 575°C, jumlah keasaman berkurang secara signifikan menunjukkan bahwa kelompok-kelompok fungsional yang terbentuk sebagian besar terurai pada suhu ini (Liakakou *et al.*, 2014).

Uji Karakterisasi Katalis

a. XRD

Pengujian XRD dilakukan sampel arang sebelum diaktivasi, AC1, AC2, Cu/ZnO/AC1, dan Cu/ZnO/AC2. Sampel katalis yang diuji adalah katalis yang belum direduksi oleh gas

H₂, sehingga sampel katalis Cu/ZnO/karbon aktif masih mengandung oksida-oksida logam, seperti CuO dan ZnO. Pengujian XRD yang dilakukan masih mengandung oksida-oksida logamnya dibandingkan dengan pola difraksi CuO dan ZnO dengan database COD (*Crystallography Open Database*) masing-masing COD 1526990 dan COD 2107059 menggunakan software aplikasi Match. Hasil analisa Cu/ZnO/Karbon Aktif dapat dilihat tabel dibawah ini:

Tabel 6. Pola Difraksi Katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif

Sebelum aktivasi		AC1		AC2	
2θ	I ₀	2θ	I ₀	2θ	I ₀
26,3	258	26,3	256	26,2	242
31,7	90	27,1	418	26,4	249
31,7	104	31,7	103	31,8	120
34,4	102	34,3	86	31,9	125
35,3	100	34,4	108	34,2	108
36,1	103	35,5	89	34,4	116
36,4	96	35,4	95	35,3	95
38,4	102	36,3	61	36,3	96
38,5	91	38,6	100	36,5	101
61,4	45	61,4	46	61,5	47
61,5	53	65,5	39	65,5	40

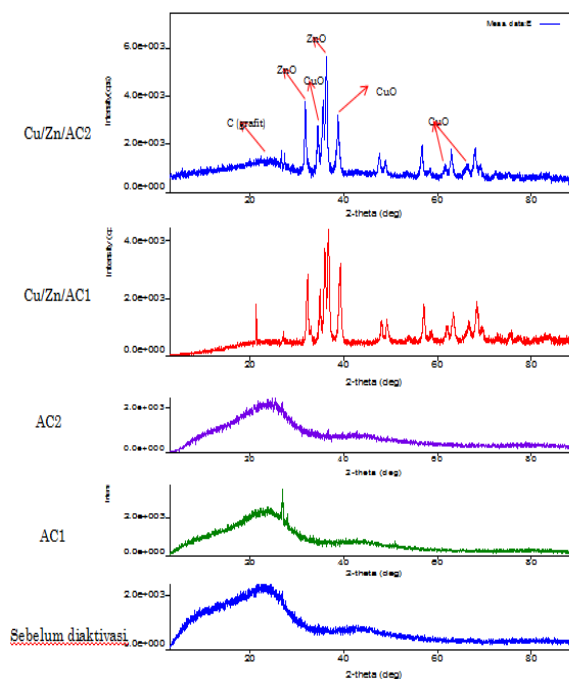
Cu/ZnO/Karbon Aktif			
Cu/ZnO/AC1		Cu/ZnO/AC2	
2θ	I ₀	2θ	I ₀
26,1	68	26	151
31,7	63	31,7	313
32,1	185	34,4	234
32,3	340	35,3	240
34,3	78	36,3	624
35,3	110	36,3	678
36,3	249	38,5	228
36,5	278	38,8	384
38,8	170	61,5	130
61,4	81	65,5	89
65,5	74	65,5	89

Intensitas yang semakin besar menyebabkan derajat kristalinitas menjadi lebih besar (Gustama, 2012). Berdasarkan *database* pola difraksi COD diperoleh bahwa ZnO akan terlihat pada sudut 2θ, diantaranya yaitu 36,40; 35,46; 68,08; 68,17. Jika dibandingkan dengan hasil analisa beberapa sampel di atas dapat intensitas dari katalis Cu/Zn/AC2 yang memiliki kandungan ZnO dengan intensitas yang besar, yaitu sebesar 678 pada sudut 36,36°.

Berdasarkan *database* pola difraksi COD diperoleh bahwa pola difraksi C (grafit) akan terlihat pada sudut 2θ, yaitu 26°. Sampel uji

yang memiliki sifat C grafit yang tinggi adalah karbon yang belum diaktivasi, kemudian sampel AC1 dan AC2 juga masih mengandung sifat C grafit yang tinggi juga. Hal ini dapat dilihat dari intensitas dari 2θ Karbon sebelum diaktivasi paling tinggi dibandingkan semua sampel uji, yaitu pada 26,26 intensitasnya sebesar 258. Struktur kristalin pada arang terbentuk dari senyawa karbon yang membentuk lapisan heksagonal. Grafit merupakan material berbasis karbon yang berstruktur kristal, bersifat tidak elastis, dan memiliki konduktivitas termal dan listrik yang baik. Atom-atom karbon dalam grafit tersusun membentuk heksagonal di sistem cincin planar terkondensasi. Masing-masing atom karbon berikatan kovalen dengan atom karbon tetangganya, sedangkan antar lapisan membentuk ikatan van der Waals (Pari, 2004).

Menurut Wismadi (2001), puncak-puncak CuO akan terlihat pada sudut 2θ, diantaranya yaitu 35,30°; 38,50°; 61,47°; dan 65,53°. Hasil sampel uji yang memiliki kandungan CuO yang paling tinggi adalah Cu/ZnO/AC2 dengan intensitas 240 pada sudut 35,3°. Sedangkan hasil uji Cu/ZnO/AC1 memiliki intensitas yang kecil pada sudut 35,3 yaitu sebesar 110°.



Gambar 1 .Perbandingan Pola Difraksi Hasil Uji XRD

Semakin tinggi jumlah asam fosfat dalam larutan impregnasi, maka kekuatan fisik katalis akan semakin tinggi, namun molekul-molekul asam fosfat ini akan menutupi molekul promotor (ZnO) sehingga dapat menurunkan aktivitas katalis (Tsani, 2011). Berdasarkan

Sun (2013), jumlah asam fosfat yang ditambahkan pada katalis maksimum adalah sebanyak 0,5%wt.

b. XRF

Sampel pengujian XRF sama dengan XRD dengan hasil yang dapat dilihat pada tabel berikut:

Tabel 7. Hasil Uji Kandungan Unsur Kimia XRF

Sebelum diaktivasi	17,40	10,6	50,90
AC1	86,8	-	0,52
AC2	16,8	-	67,0
Cu/ZnO/AC1	0,19	45,8	46,3
Cu/ZnO/AC2	0,30	41,8	47,1

Hasil pengujian dengan menggunakan XRF yang memiliki puncak yang tertinggi adalah unsur Fe, Cu dan Zn. Berdasarkan hasil uji di atas, kandungan Fe dalam AC1 (aktivator H₃PO₄) paling tinggi dibandingkan dengan hasil uji sampel lainnya. Kandungan Fe akan semakin menurun atau hilang dengan adanya karbonisasi, aktivasi dan impregnasi. Kandungan Cu paling tinggi ada pada Cu/ZnO/AC1 yang menunjukkan fasa logam aktif Cu yang terserap karbon aktif yang diaktivasi dengan H₃PO₄ paling banyak dibandingkan Cu/ZnO/AC2. Sedangkan kandungan senyawa Zn paling tinggi pada sampel Cu/ZnO/AC2. Maka, dapat dilihat bahwa Cu/ZnO/AC1 paling banyak menyerap logam Cu sedangkan Cu/ZnO/AC2 (aktivator ZnCl₂) paling banyak menyerap unsur Zn.

Berdasarkan penelitian Nasution dan Rambe (2011), uji XRF pada arang cangkang kelapa sawit dengan suhu karbonisasi 500°C masih mengandung unsur Al, Si, K dan Fe, namun puncak (peak) yang paling tinggi adalah unsur karbonnya (unsur C). Pada pengujian sampel karbon aktif yang sebelum dan sesudah diaktivasi tidak menunjukkan adanya unsur karbon yang kemungkinan adanya beberapa faktor yang penyebab, yaitu kesalahan alat yang tidak menghasilkan analisa kadar unsur C.

KESIMPULAN

Kesimpulan dari hasil penelitian ini yaitu :

1. Preparasi karbon aktif sebagai support katalis terbagi dalam 3 tahap, yaitu dehidrasi pada suhu 105°C selama 1 jam,

karbonisasi pada suhu 550°C selama 3 jam, dan aktivasi dengan menggunakan H₃PO₄ (AC1) dan ZnCl₂ (AC2) dengan direndam selama 24 jam.

2. Preparasi katalis Cu/ZnO/Karbon Aktif dengan metode impregnasi perbandingan massa Cu:ZnO:Karbon Aktif (10:10:80% w/t) dan dikalsinasi.
3. Hasil uji XRD pada karbon aktif sebelum diaktivasi, aktivator H₃PO₄ dan aktivator ZnCl₂, kandungan C (grafit) muncul pada 2θ 26° dengan aktivator H₃PO₄ puncak kristalinitas paling tinggi dan amorf. Pada katalis Cu/ZnO/AC2 memiliki kristalinitas lebih tinggi dibandingkan Cu/ZnO/AC1 dengan CuO muncul pada 2θ 35,30°;38,50°;61,47°; dan 65,53°; sedangkan ZnO muncul pada 2θ yaitu 36,40; 35,46; 68.08; dan 68,17.
4. Hasil uji XRF pada karbon aktif sebelum diaktivasi, aktivator H₃PO₄ dan aktivator ZnCl₂, kandungan Fe tinggi dibandingkan setelah di-impregnasi menjadi katalis sedangkan kandungan Cu paling tinggi pada katalis Cu/ZnO/AC1 sebanyak 45,80% dibandingkan katalis Cu/ZnO/AC2 sebanyak 41,80%.

DAFTAR PUSTAKA

Ariyanti, R. 2012. Pengaruh Garam Prekursor Terhadap Aktivitas Katalis CuO/γ-Al₂O₃ yang Digunakan Dalam Reaksi Hidrogenasi Minyak Jarak. Skripsi Universitas Indonesia.

Danarto, Y. C., dan Samun-T., 2008, Pengaruh Aktivasi Karbon dari Sekam Padi pada Proses Adsorpsi Logam Cr (IV): Jurusan Teknik Kimia UNS Surakarta (Online),7.

Dias, J.M., Alvim-Ferraz, M.C.M. Almeida, M.F. Diaz, J.D.M. Polo, M.S. Utrilla. 2012. Selection of Heterogeneous Catalysts for Biodiesel Production from Animal Fat. Fuel. 94:418-425.

Fidalgo, B., Zubizarreta, L., Arenillas, A. 2010. Synthesis of Carbon-supported Nickel Catalysts for The Dry Reforming of CH₄, Fuel Processing Technology, 91, 765-769.

Hameed, B.H., L.F. Lai, L.H. Chin. 2009. Production of Biodiesel from Palm Oil (Elaeis guineensis) Using Heterogeneous Catalyst : An Optimized Process. Fuel Processing Techonology. 90:606-610.

J.T. Richardson. 1989. Principle of Catalysts Development. Plenum Press.

- Jamaludin, A. dan D. Adiantoro. 2012. Analisis Kerusakan X-Ray Fluoresence (XRF). Jurnal Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir BATAN. ISSN 1979-2409 (9-10): 19-28.
- Khairunnisa, R., 2008, Kombinasi Teknik Elektrolisis dan teknik Adsorpsi menggunakan Karbon Aktif untuk Menurunkan Konsentrasi Senyawa Fenol dalam Air: FMIPA Depok.
- Kurniati, E., 2008, Pemanfaatan Cangkang Kelapa Sawit sebagai Arang Aktif: Penelitian Ilmu Teknik: 8 (2).
- Lestari, D.Y. 2012. Pemilihan Katalis yang Ideal. "Prosiding Seminar Nasional Penelitian, Pendidikan dan Penerapan MIPA". Universitas Negeri Yogyakarta
- Ma, Y., Q. Wang, X. Wang, X. Sun dan X. Wang. 2015. A Comprehensive Study on Activated Carbon Prepared from Spent Shiitake Substrate via Pyrolysis with ZnCl₂. Journal Porous Mater. 22(1):157-169.
- Maryanto, D., Mulasari, S. A., dan Suryani, D., 2009, Penurunan Kadar Emisi Gas Buang Karbon Monoksida (CO) dengan Penambahan Arang Aktif pada Kendaraan Bermotor Di Yogyakarta: KES MAS.
- Masrukan, Rosika, D. Anggraini dan J. Kisworo. 2007. Komparasi Analisis Komposisi Dengan Menggunakan Teknik X-ray Fluorocency (XRF) dan Emission Spectroscopy. Prosiding Pustek Akselerator dan Proses Bahan BATAN. ISSN 0216-3128: 120-125.
- Munnik, P., Petra, E., Krijn, P. 2015. Recent Developments in The Synthesis of Supported Catalyst, American Chemical Society, 155, 6687-6718
- Nasution, Z.A. dan S.M. Rambe. 2011. Pengaruh Temperatur Terhadap Pembentukan Pori Arang Cangkang Sawit Sebagai Adsorpsi. Jurnal Dinamika Penelitian Industri. 22(1):41-47.
- Pahan, I. 2007. Panduan Lengkap Kelapa Sawit: Manajemen Agribisnis dari Hulu Hingga Hilir. Jakarta: Penerbit Swadaya.
- Prahas, D., Y. Kartika, N. Indraswati dan S. Ismadji. 2008. Activated Carbon from Jackfruit Peel Waste by H₃PO₄ Chemical Activation: Pore Structure and Surface Chemistry Characterization. Chemical Engineering Journal. 140(1):32-42.
- Rahman, R. 2008. Pengaruh Proses Pengerinan, Anil dan Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Nanopartikel TiO₂ Hasil Proses Sol-Gel. Skripsi Fakultas Teknik Departemen Metalurgi dan Material Depok.
- Sutyono. 2002. Pembuatan Briket Arang dari Tempurung Kelapa Dengan Bahan Pengikat Tetes Tebu dan Tapioka. Jurnal Kimia dan Teknologi. Surabaya.
- Tirono, M. dan A. Sabit. 2011. Efek Suhu Pada Proses Pengarangan Terhadap Nilai Kalor Arang Tempurung Kelapa (Coconut Shell Charcoal). 3(2): 143-152.
- Tri Kurnia Dewi, Arif Nurrahman, Edwin Permana. 2009. Pembuatan Karbon Aktif Dari Kuli Ubi Kayu (Mannihot esculenta) Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Sriwijaya Jurnal Teknik Kimia, No. 1, Vol. 16.
- Vantyca, D. 2017. Pemanfaatan Cangkang Kelapa Sawit Terimpregnasi Logam Cu/Zn Sebagai Katalis Untuk Konversi Syngas Menjadi Metanol. Skripsi Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta.
- Wang, Y., Gan, Y., R. Whiting. 2009. Synthesis of sulfated titania supported on mesoporous silica using direct impregnation and its application in esterification of acetic acid and n-butanol. Journal of Solid State Chemistry. 182(9):2530-2534