

SINTESIS ZEOLIT X DENGAN MODIFIKASI RASIO Si/AI DAN  
DIGUNAKAN SEBAGAI KATALIS DALAM REAKSI O-  
METILASI FENOL DAN MINYAK JAMBU METE DENGAN  
METANOL DALAM FASE CAIR

SARA AYU SEKARINI

0606069312



UNIVERSITAS INDONESIA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

DEPARTEMEN KIMIA

DEPOK

2009

SINTESIS ZEOLIT X DENGAN MODIFIKASI RASIO Si/Al DAN  
DIGUNAKAN SEBAGAI KATALIS DALAM REAKSI O-  
METILASI FENOL DAN MINYAK JAMBU METE DENGAN  
METANOL DALAM FASE CAIR

Skripsi diajukan sebagai salah satu syarat  
Untuk memperoleh gelar Sarjana Sains

Oleh:

SARA AYU SEKARINI

0606069312



DEPOK

2009

SKRIPSI : SINTESIS ZEOLIT X DENGAN MODIFIKASI  
RASIO Si/AI DAN DIGUNAKAN SEBAGAI  
KATALIS DALAM REAKSI O-METILASI FENOL  
DAN MINYAK JAMBU METE DENGAN  
METANOL DALAM FASE CAIR

NAMA : SARA AYU SEKARINI

NPM : 0606069312

SKRIPSI INI TELAH DIPERIKSA DAN DISETUJUI

DEPOK, Desember 2009

Dr.rer.nat Widajanti Wibowo  
PEMBIMBING

Tanggal lulus Ujian Sidang Sarjana : Desember 2009

Penguji I : Dr. Ivandini Tribidasari .....

Penguji II : Dr. Yuni K. Krisnandi .....

Penguji III : Drs. Sunardi M.Si .....

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kepada Tuhan Yesus Kristus (Tuhan dan Juruselamatku), karena atas segala berkat, kasih, anugerah, dan penyertaanNya-lah penulis dapat menyelesaikan proses penelitian dan penulisan skripsi ini. Penulis menyusun skripsi ini untuk memenuhi persyaratan dalam memperoleh gelar sarjana sains.

Penulis juga ingin mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Ibu Dr.rer.nat Widajanti Wibowo selaku Pembimbing Penelitian penulis, yang dengan sabar dan setia membimbing penulis dalam penelitian itu. Tak hanya itu, Beliau juga dengan tulus mendengarkan setiap keluh kesah, memberi saran, masukan, dorongan, motivasi, dan nasehat kepada penulis.
2. Bapak Dr. Jarnuzi Gunlazuardi selaku Pembimbing Akademik penulis, yang tak henti-hentinya memberikan semangat dan motivasi yang kuat selama ini. Terima kasih untuk setiap perhatian Bapak yang telah dicurahkan kepada penulis setiap semesternya ketika penulis berkonsultasi.
3. Bapak Dr. Ridla Bakri selaku Ketua Departemen Kimia FMIPA UI, atas setiap perhatian dan dorongan yang diberikan selama ini.

4. Ibu dra. Tresye Utari, M.Si selaku Koordinator Penelitian dan Ibu Ir. Widyastuti Samadi, M.Si selaku Koordinator Pendidikan, atas setiap pertolongan dan masukan yang membangun penulis.
5. Seluruh dosen Departemen Kimia FMIPA UI yang telah mengajar dan membimbing penulis selama ini, khususnya kepada Ibu dra. Siti Chanah M.Si (“Terima kasih Bu, berkat Ibu, saya dapat mengerti prinsip dasar Kimia Organik.”), Prof. Wahyudi Priyono (“Terima kasih Pak atas kebaikan Bapak selama saya mengikuti karantina Olimpiade di Bandung.”), Bapak Dr.Asep Saefumillah (“Bapak yang selalu mengerti dan mau mendengarkan curhat saya.”), dan Bapak Dr. Yoki Yulizar (“Bapak jangan lupa traktir kita lagi.”)
6. Seluruh Staf Departemen Kimia FMIPA UI (Pak Marji, Pak Hadi, Babe”Trisno”, Mbak Ina, Mbak Cucu, Pak Kiri, Pak Amin, dan juga Pak Hedi) atas kerjasama, pertolongan, juga canda tawanya.
7. Kong Pong dan Om Yuke (kakekku tercinta dan om-ku yang sangat baik hati), atas kebaikan hati kalian yang telah membiayai seluruh proses perkuliahan penulis hingga penulis dapat menyelesaikan studi dengan baik.
8. Mak Nio (nenekku yang tersayang) atas motivasi dan doa yang telah diberikan kepada penulis sehingga penulis dapat menyelesaikan studi dengan baik.

9. Mama, Papa, Rosa, dan Daniel (adik-adikku) untuk semangat yang selalu kalian berikan di kala penulis merasa putus asa. Kalian yang menjadi motivasi penulis untuk menyelesaikan skripsi ini dengan baik.
10. Ku Ling dan Kim Is, yang telah mendukung penulis dalam menyelesaikan skripsi ini.
11. Norbertus Krisnu Prabowo atas setiap curahan kasih sayang, kesabaran, dan semangat yang tulus kepada penulis. Simpaku, terima kasih.
12. Riyanti Teresa Novitawati, sahabat terbaik penulis yang selalu memberikan semangat, dorongan, kekuatan di saat penulis lemah. “Perjuangan yang kita lalui tak akan pernah sia-sia Ri.”
13. Tanti Maryana Fenida Simangunsong, sahabat penulis yang selalu memberikan semangat dan juga keceriaan bagi penulis. Kekonyolan dan canda tawa itu akan selalu kurindukan.
14. Tantri Kuswantiningsih, sahabat “unyil” penulis yang selalu memotivasi, membantu, dan mewarnai hari-hari penulis selama ini. Unyilku, berjuang selalu ya!
15. Tim “Nginap” (Kak Sepit, Kak TJ, Kak Widya, Ardie, Kak Retno, Kak Vira, dan Kak Emil) yang selalu kompak bila ingin menginap di Departemen Kimia ini.
16. Tim Katalis (Kak Vira, Kak Any, dan Kak Retno) yang selalu berjuang bersama-sama dengan penulis, berkeluh kesah bersama, dan menggila bersama.

17. Rekan-rekan penelitian Lantai 3 (Kak Ersi, Kak Widya, Kak Dian, Kak Nisa, Kak Neny, Kak Sepit, Kak Retno, Kak Vira, Kak Any, Kak Emil, Kak Camel, Kak Hani, dan Kak Iman).

18. Rekan-rekan penelitian Lantai 4 (Ardie, Riyanti, Kak Pur, Kak Atika, Kak Syarif, Kak Meta, dan Ko Fery).

19. Teman-teman angkatan 2005 (terutama Kak Daniel, Alex”Bonteng”), teman-teman angkatan 2006 (Vania Viandra, Sonia, Firmansyah Wardhani), teman-teman angkatan 2007 (terutama Dante Nathanael), teman-teman angkatan 2008 (Esti Wijayanti, Bimo Budi Utomo, Daniel Jeffry Pasaribu, Anthony, Bali Susilo, Andreas, Rania, dan anak-anak asistenku yang lain).

20. “Beludak tim” (Pebi, Plety, Nadia, Ponikem) atas persahabatan tulus yang telah kalian berikan. Nur and all Sunday School teacher...

21. Teman-teman Griya Tiara Indah (Mbak Suri, Mbak Tatu, Mbak Afifah, Pipin, Dewi, Devi, Mpew, dan Wulan) yang selalu memberi semangat pada penulis.

Depok, November 2009

Penulis

## ABSTRAK

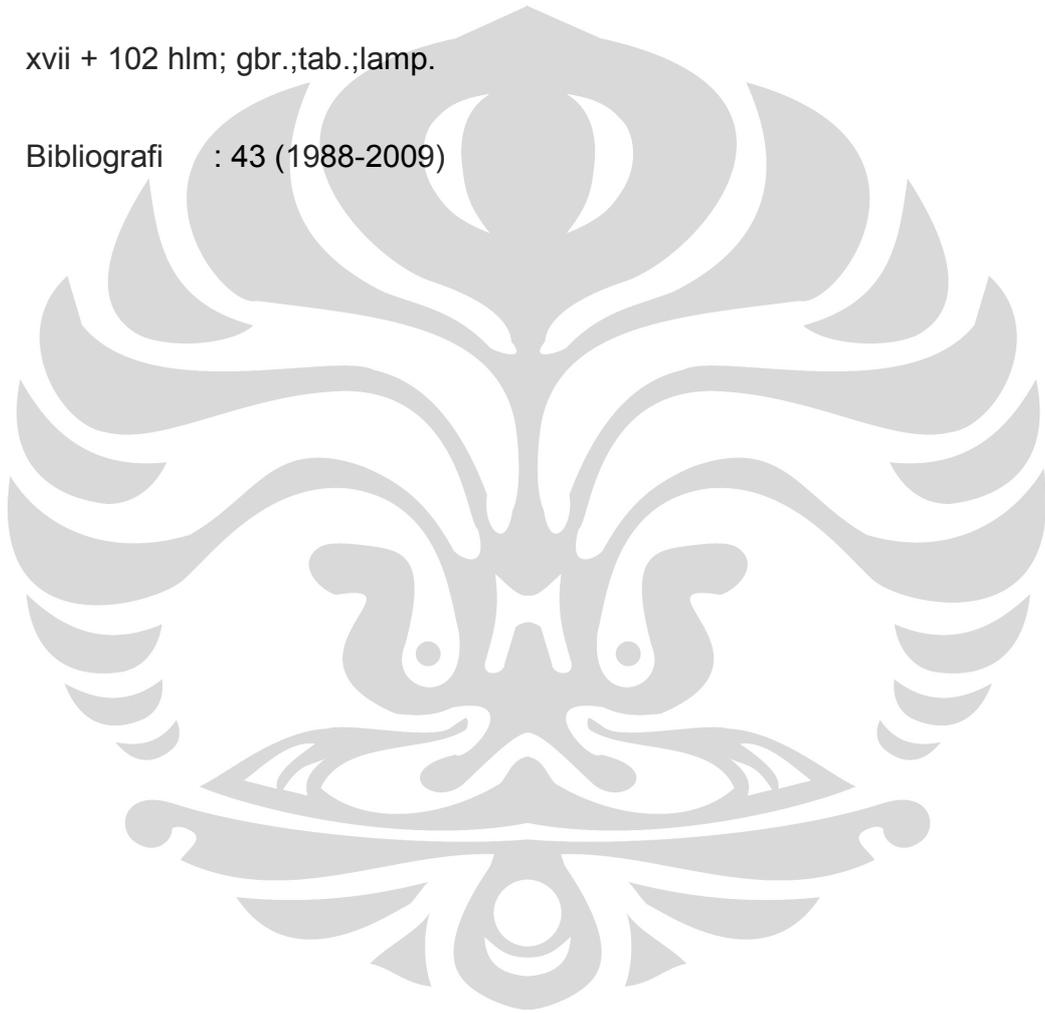
Kaolin merupakan mineral alam yang melimpah keberadaannya di Indonesia dan memiliki kandungan  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tertentu yang dapat digunakan sebagai bahan dasar pembentuk material lain, seperti zeolit X. Zeolit X merupakan material aluminosilikat berongga yang memiliki rasio Si/Al yang rendah (1-1,5) dan banyak digunakan sebagai katalis dalam berbagai proses industri. Dalam penelitian ini dilakukan sintesis zeolit X dengan proses hidrotermal pada suhu  $90^\circ\text{C}$  selama 72 jam dari bahan dasar kaolin dengan komposisi gel yaitu: 3,83  $\text{Na}_2\text{O}$  : 1,17  $\text{K}_2\text{O}$  :  $\text{Al}_2\text{O}_3$  : 2,97  $\text{SiO}_2$  : 118  $\text{H}_2\text{O}$  yang divariasikan rasio Si/Al-nya, yakni Si/Al=1,33 dan 1. Zeolit X tersebut diaplikasikan sebagai katalis dalam reaksi O-metilasi fenol dan metanol menjadi anisol. Reaksi yang terjadi divariasikan menurut waktu (6, 10, 14, 18, dan 24 jam) dan %berat katalis (5%, 10%, 15%, dan 25% berat reaktan). Hasil reaksi kemudian dianalisa menggunakan kromatografi gas dan ditentukan %yield anisol, %konversi fenol, dan %selektifitas katalis. Kondisi optimum yang tercapai adalah waktu 10 jam dan berat katalis 15% berat reaktan dengan menggunakan zeolit X (Si/Al=1,33) dimana %konversi fenol = 85,4%; %yield anisol = 84,6%; dan %selektifitas = 99,1%. Reaksi O-metilasi juga dilakukan pada minyak jambu mete sebagai sumber fenol dengan metanol. Hasil reaksi kemudian diekstrak menggunakan etil asetat dan heksana kemudian diambil fasa organiknya dan dianalisa menggunakan

FTIR. Didapati bahwa terbentuk puncak pada daerah  $2869\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan  $-\text{OCH}_3$ .

Kata kunci : zeolit X, O-metilasi, selektifitas, aktivitas, konversi, yield, fenol, metanol.

xvii + 102 hlm; gbr.;tab.;lamp.

Bibliografi : 43 (1988-2009)



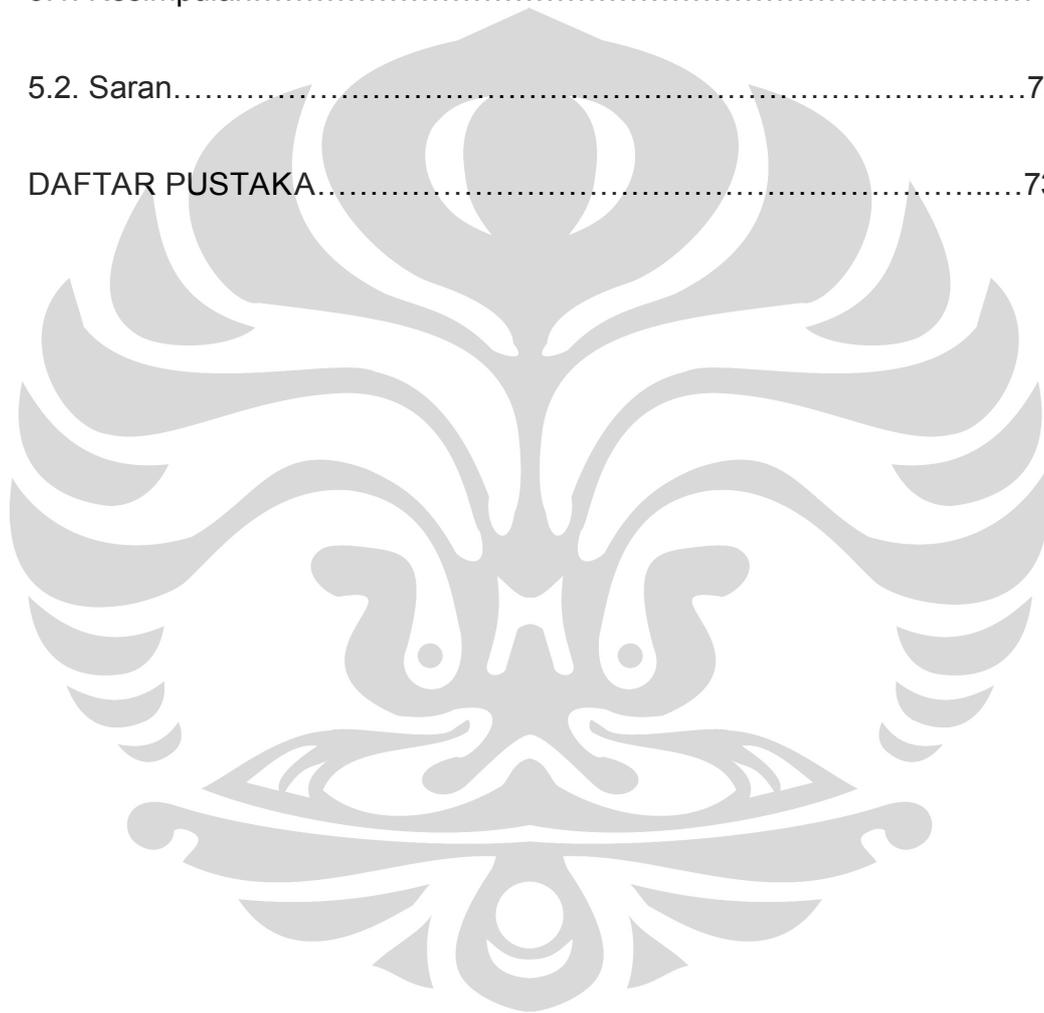
## DAFTAR ISI

KATA PENGANTAR.....	i
ABSTRAK.....	v
DAFTAR ISI.....	vii
DAFTAR GAMBAR.....	xi
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xiv
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1. Latar Belakang Penelitian.....	1
1.2. Tujuan Penelitian.....	4
1.3. Perumusan Masalah.....	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	5
2.1. Kaolin.....	5
2.2. Zeolit.....	8
2.2.1. Klasifikasi Zeolit.....	9
2.2.2. Struktur Kerangka Zeolit.....	11
2.2.3. Sifat Khas Zeolit.....	12
2.2.4. Aktivasi Zeolit.....	15
2.2.5. Aplikasi Zeolit.....	15

2.3. Zeolit X.....	17
2.3.1. Struktur Zeolit X.....	17
2.3.2. Komposisi kimia zeolit X.....	18
2.3.3. Proses Sintesis Zeolit X.....	19
2.4. Katalis.....	21
2.4.1. Katalis Heterogen.....	22
2.4.2. Karakterisasi Katalis.....	23
2.4.2.1. Analisis Difraktometer Sinar X.....	23
2.4.2.1. Analisis Fluoresensi Sinar X.....	25
2.4.2.3. Analisis BET.....	26
2.5. Reaksi Katalitik O-metilasi Fenol dengan Metanol.....	26
2.5.1. Analisis Hasil Uji Katalitik dengan Kromatografi Gas.....	27
2.5.2. Analisis FTIR.....	28
2.6. Minyak Jambu Mete.....	30
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	35
3.1. Bahan dan Alat Kimia.....	35
3.1.1. Bahan-bahan Kimia yang Digunakan.....	35
3.1.2. Alat-alat yang Digunakan.....	36
3.2. Sintesis Zeolit X.....	37

3.2.1. Sintesis Zeolit X dengan Rasio Si/Al 1,33.....	37
3.2.2. Sintesis Zeolit X dengan Rasio Si/Al 1.....	38
3.3. Karakterisasi Zeolit X.....	38
3.4. Perakitan Mikroreaktor Katalis Uji Katalitik Fasa Cair.....	39
3.5. Uji Katalitik Zeolit X.....	39
3.6. Analisis Hasil Uji Katalitik.....	40
BAB IV PEMBAHASAN.....	44
4.1. Karakterisasi Kaolin dan Metakaolin.....	44
4.1.1. Analisis XRD.....	44
4.1.2. Analisis XRF.....	47
4.2. Kondisi Sintesis Zeolit X.....	49
4.3. Karakterisasi Zeolit X.....	51
4.3.1. Analisis XRD.....	51
4.3.2. Analisis XRF.....	53
4.3.3. Analisis BET.....	55
4.4. Uji Aktivitas dan Selektifitas Katalis.....	57
4.4.1. Analisis Uji Katalitik dengan Kromatografi Gas (GC).....	61

4.5. Reaksi O-metilasi yang Dilakukan dengan Menggunakan Minyak Jambu Mete.....	67
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	71
5.1. Kesimpulan.....	71
5.2. Saran.....	72
DAFTAR PUSTAKA.....	73



## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Kaolin.....	5
Gambar 2.2. Struktur Kaolin.....	7
Gambar 2.3. Struktur Zeolit.....	11
Gambar 2.4. Unit Polihedral Zeolit X.....	18
Gambar 2.5. Proses Sintesis Zeolit Secara Hidrotermal.....	20
Gambar 2.6. Skema Kerja XRD.....	24
Gambar 2.7. Skema Kerja XRF.....	25
Gambar 2.8. Skema Alat Inframerah Konvensional.....	29
Gambar 2.9. Daerah Korelasi spektroskopi Inframerah .....	30
Gambar 2.10. Skema Pemanfaatan Buah Jambu Mete.....	32
Gambar 4.1. Difraktogram XRD Kaolin.....	45
Gambar 4.2. Difraktogram XRD Metakaolin.....	45
Gambar 4.3. Difraktogram XRD Zeolit X (Si/Al=1,33).....	52
Gambar 4.4. Difraktogram XRD Zeolit X (Si/Al=1).....	52

Gambar 4.5. Difraktogram Zeolit X Standard.....	53
Gambar 4.6. Mekanisme Reaksi O-metilasi Tanpa Katalis yang Diusulkan.....	60
Gambar 4.7. Mekanisme Reaksi Katalisis O-metilasi yang Diusulkan.....	60
Gambar 4.8. Contoh Kromatogram Hasil Uji Katalitik.....	61
Gambar 4.9. %Yield Anisol Berdasarkan Variasi Waktu.....	62
Gambar 4.10. %Yield Anisol Berdasarkan Variasi % Berat Katalis.....	65
Gambar 4.11. Hasil FTIR Minyak Jambu Mete dan O-metilasi Minyak Jambu Mete.....	69

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1. Aplikasi Zeolit.....	16
Tabel 4.1. Data XRF Kaolin.....	47
Tabel 4.2. Data XRF Metakaolin.....	48
Tabel 4.3. Data XRF Zeolit X (Si/Al=1,33).....	54
Tabel 4.4. Data XRF Zeolit X (Si/Al=1).....	54
Tabel 4.5. Hasil Analisis BET.....	55
Tabel 4.6. Hasil Reaksi O-metilasi dengan Menggunakan Zeolit X Berdasarkan Variasi Waktu Reaksi.....	64
Tabel 4.7. Hasil Reaksi O-metilasi Fenol dengan Metanol Menggunakan Zeolit X Berdasarkan Variasi Berat Katalis.....	66
Tabel 4.8. Hasil FTIR Minyak Jambu Mete dan O-metilasi Minyak Jambu Mete.....	68

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1. Perhitungan Kuantitatif GC.....	78
Lampiran 2. Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi waktu dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1,33).....	82
Lampiran 3. Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi waktu dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1).....	83
Lampiran 4. Grafik % yield anisol yang terbentuk terhadap waktu pada suhu 155 <sup>0</sup> C dan molar rasio fenol : metanol 1:20.....	84
Lampiran 5. Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi berat katalis dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1,33).....	84
Lampiran 6. Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi berat katalis dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1).....	85
Lampiran 7. Grafik % yield anisol yang terbentuk terhadap berat katalis pada suhu 155 <sup>0</sup> C dan molar rasio fenol : metanol 1:20.....	85

Lampiran 8. Difraktogram XRF Kaolin.....	86
Lampiran 9. Difraktogram XRF Metakaolin.....	87
Lampiran 10. Difraktogram XRF Zeolit X (Si/Al=1,33).....	88
Lampiran 11. Difraktogram XRF Zeolit X (Si/Al=1).....	89
Lampiran 12. Data BET Zeolit X (Si/Al=1,33).....	90
Lampiran 13. Data BET Zeolit X (Si/Al=1).....	92
Lampiran 14. Mikroreaktor Uji Katalitik Zeolit X.....	94
Lampiran 15. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 6 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33).....	95
Lampiran 16. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 10 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33).....	95
Lampiran 17. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 14 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33).....	96
Lampiran 18 Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 18 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33).....	96
Lampiran 19. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 24 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33).....	97

Lampiran 20. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 6 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1).....	97
Lampiran 21. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 10 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1).....	98
Lampiran 22. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 14 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1).....	98
Lampiran 23. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 18 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1).....	99
Lampiran 24. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 24 jam Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1).....	99
Lampiran 25. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33) Sebesar 5%.....	100
Lampiran 26. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33) Sebesar 15%.....	100
Lampiran 27. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1,33) Sebesar 25%.....	101
Lampiran 28. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1) Sebesar 5%.....	101

Lampiran 29. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1) Sebesar 15%.....	102
Lampiran 30. Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X (Si/Al=1) Sebesar 25%.....	102



## BAB I

### PENDAHULUAN

#### 1.1 LATAR BELAKANG MASALAH

Zeolit merupakan senyawa aluminosilikat terhidrasi yang memiliki kerangka struktur tiga dimensi (3D), mikropori, dan merupakan padatan kristalin dengan kandungan utama silikon, aluminium, dan oksigen serta mengikat sejumlah tertentu molekul air di dalam porinya.<sup>27</sup>

Bila ditinjau dari sisi struktur, zeolit merupakan senyawa aluminosilikat dengan karakteristik sebagai berikut :<sup>29</sup>

1.  $[AlO_4]$  dan  $[SiO_4]$  saling berhubungan pada sudut-sudut tetrahedralnya membentuk Al, Si framework 3D yang berpori.
2. Muatan pada framework dinetralkan dengan mengikat kation-kation monovalen atau divalen di dalam porinya.
3. Memiliki kemampuan sebagai penukar kation.
4. Mengikat molekul air di dalam pori-porinya.

Zeolit ada dua macam yaitu zeolit alam dan sintetis. Zeolit alam sudah banyak dimanfaatkan sehingga jumlahnya semakin berkurang. Umumnya zeolit alam digunakan untuk pupuk, penjernihan air, dan diaktifkan untuk dimanfaatkan sebagai katalis dan adsorben. Untuk memenuhi kebutuhan zeolit ini maka para ahli melakukan penelitian sehingga didapatkan berbagai

macam zeolit sintetik. Indonesia banyak membutuhkan zeolit sintetik untuk proses – proses kimia di industri kimia seperti sebagai katalis, penukar ion, dan adsorben dalam pengolahan limbah.<sup>29</sup>

Untuk itu dibutuhkan zeolit sintetik yang mempunyai kemurnian tinggi dan kualitas baik. Bahan baku pembuatan zeolit adalah bahan yang mengandung silika dan alumunium. Kedua bahan baku ini jika diambil dari alam dan bahan logam tentunya mahal, namun dalam bentuk senyawa banyak diperoleh dan murah harganya. Salah satu contohnya adalah kaolin. Mineral kaolin yang banyak dihasilkan dari aktivitas vulkanik melimpah keberadaanya di alam Indonesia sebab Indonesia berada dalam wilayah rangkaian gunung api mulai dari Sumatera, Jawa, Nusa Tenggara, Maluku sampai Sulawesi.

Salah satu jenis zeolit sintetik yang banyak digunakan dalam proses industri adalah zeolit X. Zeolit X ini digunakan sebagai katalis, terutama karena keterlibatan penggunaan dan selektifannya dalam proses sintesis senyawa-senyawa organik. Salah satunya adalah reaksi O-metilasi fenol dengan menggunakan metanol. Penggunaan zeolit X didasarkan pada keaktifan sisi basa katalis, selektifitas produk, dan besarnya rongga katalis.

Pada penelitian sebelumnya oleh Indriyati (2005)<sup>39</sup>, telah dilakukan sintesis zeolit X dari bahan dasar kaolin. Hanya saja aplikasi penggunaan zeolit X tersebut adalah sebagai penapis molekul sikloalkana. Pembentukan metakaolin pun belum nampak amorf, karena yang dilakukan hanya pemanasan pada suhu 750<sup>0</sup>C. Penelitian tersebut kemudian dilanjutkan oleh

Iwan Kurniawan (2006)<sup>40</sup>. Dalam penelitiannya dilakukan sintesis zeolit X dari kaolin dan dimodifikasi rasio Si/Al-nya untuk dilihat kepolaran dari molekul zeolit X tersebut. Modifikasi yang dilakukan adalah memvariasikan Si/Al yaitu 1,46 dan 2,22. Terbentuk metakaolin dengan bentuk amorf yang terlihat dari difraktogram XRD-nya. Hal ini dapat terjadi akibat ditambahkan NaOH pada kaolin setelah dipanaskan pada suhu 750<sup>0</sup>C. Hal ini pertama dilakukan oleh Dessy Sitri Marbun(2006).<sup>41,43</sup>

Pada penelitian sebelumnya telah dipelajari reaksi katalitik O-metilasi fenol menjadi anisol dalam fasa cair dan fasa uap dengan sumber metilasi yaitu dimetilkarbonat dan pelarut dimetilsulfoksida untuk menjaga suhu reaksi 165<sup>0</sup>C. Didapati hasil bahwa selektifitas terbentuknya anisol lebih tinggi dalam fasa cair<sup>1,3</sup>. Studi reaksi katalitik O-metilasi fenol menjadi anisol dengan menggunakan sumber metilasi metanol juga telah dilakukan oleh Ari Fajar Riyanto.<sup>8</sup> Oleh karena itu, dalam penelitian kali ini akan diamati reaksi katalitik O-metilasi fenol dengan metanol yang menggunakan zeolit X dengan variasi rasio Si/Al. Akan diamati hubungan antara rasio Si/Al dengan aktifitas katalitik.

## 1.2. TUJUAN PENELITIAN

Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis zeolit X dari bahan dasar kaolin; yang akan divariasikan rasio Si/Al-nya dengan tujuan akan diamati hubungan antara aktifitas katalitik dengan rasio Si/Al dari zeolit X.

. Zeolit X ini digunakan sebagai katalis dalam reaksi O-metilasi fenol dengan metanol menjadi anisol dan juga O-metilasi pada minyak jambu mete.

## 1.3. PERUMUSAN MASALAH

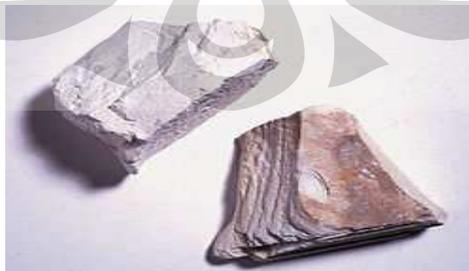
Dalam penelitian ini akan diamati keaktifan dan selektifitas zeolit X yang disintesis dari kaolin dengan rasio Si/Al yang berbeda. Keaktifan dan selektifitas ini terlihat dari reaksi katalitik O-metilasi fenol dan metanol menjadi anisol dengan menggunakan zeolit X.

## BAB II

### TINJAUAN PUSTAKA

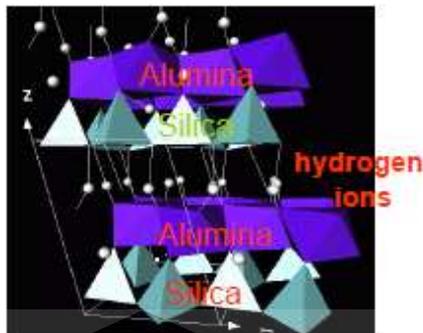
#### 2.1. KAOLIN

Kaolin merupakan mineral alam yang mempunyai formula  $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ . Terdiri dari lapisan silikat yang berstruktur tetrahedral dengan atom Oksigen yang terhubung pada aluminat yang berstruktur oktahedral.<sup>34</sup> Kaolin terdapat pada tanah dengan kondisi iklim yang cukup panas dan berasal dari berbagai reaksi kimia yang terjadi secara alamiah, seperti pada daerah gunung api.<sup>34</sup> Di gunung api, iklim cukup panas dan banyak terjadi rangkaian reaksi kimia alamiah. Oleh sebab itulah, kaolin banyak ditemukan di Indonesia yang banyak terdapat gunung api. Kaolin memiliki 2 molekul penyusun utama, yakni  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Kedua komponen inilah yang mengakibatkan kaolin banyak dijadikan sumber material untuk sintesis material lain, seperti zeolit.<sup>8</sup>



Gambar 2.1  
Kaolin<sup>34</sup>





Gambar 2.2  
Struktur Kaolin<sup>20</sup>

Proses kalsinasi ini dilakukan pada suhu 850<sup>0</sup>C dikarenakan pada suhu 925<sup>0</sup>C-980<sup>0</sup>C, metakaolin akan berubah fasa menjadi spinel yang mempunyai tipe struktur 5-alumina dimana SiO<sub>2</sub> akan keluar, sesuai dengan reaksi:<sup>8</sup>



Pada suhu pemanasan diatas 1050<sup>0</sup>C akan terbentuk mullite dengan pengeluaran silika dan stabil sampai suhu 1540<sup>0</sup>C, yaitu temperatur lelehnya, reaksi sebagai berikut:<sup>8</sup>



Apabila suhu kalsinasi kaolin terlalu rendah yaitu kurang dari 700<sup>0</sup>C, yang terjadi adalah belum terputusnya ikatan antara Si-Al, melainkan hanya menghilangkan kandungan air dan zat-zat organik yang mudah menguap

## 2.2. ZEOLIT

Istilah zeolit berasal dari bahasa Yunani “zein” yang berarti membuih dan “lithos” yang berarti batu. Hal ini sesuai dengan sifat mineral zeolit yaitu dibawah kondisi pemanasan yang cepat mineral akan terlihat mendidih karena dehidrasi molekul air yang dikandungnya<sup>4</sup>.

Zeolit umumnya didefinisikan sebagai kristal aluminosilikat yang berstruktur tiga dimensi, yang terbentuk dari tetrahedral aluminat dan silikat dengan rongga-rongga di dalam yang berisi ion-ion logam, biasanya alkali atau alkali tanah yang berfungsi sebagai penyeimbang muatan, dan molekul air yang dapat bergerak bebas.<sup>13,8,30</sup> Secara empiris, rumus molekul zeolit adalah  $M_{x/n} \cdot (AlO_2)_x \cdot (SiO_2)_y \cdot xH_2O$ . Struktur zeolit sejauh ini diketahui bermacam-macam, tetapi secara garis besar strukturnya terbentuk dari unit bangun primer, berupa tetrahedral yang kemudian menjadi unit bangun sekunder polihedral.

Karena berongga, molekul atau ion yang lebih kecil atau sama dengan ukuran rongga dapat masuk ke dalamnya, sehingga menyebabkan zeolit dapat digunakan sebagai penukar ion, karena kation-kation logam alkali atau alkali tanah yang dapat bergerak bebas di dalam rongga dan dapat saling dipeertukarkan dengan kation-kation logam lainnya dengan jumlah muatan yang sama.<sup>33</sup> Zeolit mempunyai selektivitas yang tinggi terhadap molekul polar, hal ini disebabkan karena timbulnya medan elektrik yang berasal dari

kation didalam rongga zeolit sehingga bersifat sebagai pusat absorpsi untuk molekul polar<sup>33</sup>.

### 2.2.1. Klasifikasi Zeolit<sup>8,28,30</sup>

Menurut cara pembentukannya, zeolit dibagi menjadi 2 jenis, yaitu:

#### 1. Zeolit alam

Zeolit alam terbentuk melalui 2 jalur yaitu pembentukan pada temperatur di bawah 40<sup>0</sup>C akibat proses sedimentasi dan juga melalui pembentukan pada temperatur tinggi akibat proses vulkanis. Zeolit alam mempunyai rasio Si/Al yang berbeda-beda. Hal ini bergantung pada kondisi hidrotermal lingkungan seperti suhu, tekanan, pH, dan komposisi air setempat.

Pada saat ini telah ditemukan lebih dari 50 jenis zeolit alam. Secara geologi, endapan zeolit terbentuk karena:

- a. Sedimen vulkanik pada lingkungan danau, seperti klinoptilolit; erionit; khabasit; dan filipsit.
- b. Hasil alterasi air tanah, seperti modernit dan klinoptilolit.
- c. Hasil diagenetik, seperti heulandit dan laumontit.
- d. Hasil hidrotermal.

#### 2. Zeolit sintetik/buatan.

Zeolit buatan terbentuk sebagai hasil dari rekayasa manusia melalui proses kimia, yaitu dengan mengkondisikan rasio antara Si

dan Al, zat pengarah yang diberikan, pH campuran, suhu pemanasan hidrotermal, dan waktu sintesis. Hal ini yang menjadikan zeolit buatan mempunyai kelebihan dari zeolit alam yaitu proses pembuatannya dapat disesuaikan dengan kebutuhan. Tiap jenis zeolit buatan mempunyai diameter pori yang berbeda-beda bergantung pada banyaknya tetrahedral silika dan alumina penyusun pori zeolit.

Zeolit sintetis dapat dibedakan berdasarkan rasio Si/Al-nya, yakni:

a. Zeolit silika rendah

Zeolit dengan perbandingan Si/Al 1 – 1,5, memiliki konsentrasi kation paling tinggi, dan mempunyai sifat adsorpsi yang optimum. Contoh zeolit silika rendah adalah zeolit A dan X;

b. Zeolit silika sedang

Zeolit yang mempunyai perbandingan Si/Al adalah 2-5. Contoh zeolit jenis ini adalah Mordenit, Erionit, Klinoptilolit, zeolit Y;

c. Zeolit silika tinggi

Merupakan zeolit dengan perbandingan kadar Si/Al antara 10 – 100, bahkan lebih. Contohnya adalah ZSM-5 .

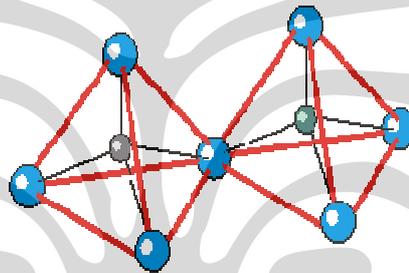
d. Zeolit Si (tanpa Al)

Zeolit Si ini tidak mengandung Al, dapat dikatakan tidak memiliki sisi kation sama sekali. Contohnya adalah silikait.

### 2.2.2. Struktur Kerangka Zeolit

Unit pembangun dasar zeolit adalah tetrahedral  $\text{AlO}_4^{5-}$  dan  $\text{SiO}_4^{4-}$ .

Zeolit termasuk dalam mineral tektosilikat, terbentuk dari jaringan bersama tetrahedral membentuk kerangka anion tiga dimensi dimana keempat atom oksigen dari setiap tetrahedral dipakai bersama oleh tetrahedral tetangga, tidak ada atom oksigen yang tidak dipakai bersama sehingga pada semua tektosilikat perbandingan  $(\text{Al}+\text{Si}):\text{O} = 1:2$ .<sup>8,13</sup>



Gambar 2.3  
Struktur Zeolit<sup>30</sup>

Pada struktur zeolit, semua atom Al dalam bentuk tetrahedral sehingga atom Al akan bermuatan negatif karena berkoordinasi dengan empat atom oksigen dan selalu dinetralkan oleh kation alkali tanah di dalam rongga untuk mencapai senyawa yang stabil ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ). Kation ini terikat secara kurang kuat di dalam pusat rongga dengan posisi yang tidak tetap sehingga dapat bergerak bebas dalam rongga zeolit dan mudah ditukar dengan kation lain yang bermuatan sama. Selain itu, di dalam rongga juga terdapat molekul

air yang dapat bergerak bebas dan didehidrasi dari zeolit dengan cara pemanasan<sup>16</sup>.

Zeolit tidak dapat diidentifikasi hanya berdasarkan analisa komposisi kimia saja, melainkan harus dianalisa berdasarkan strukturnya<sup>5</sup>, yaitu:

a) Unit pembangun primer (UBP)

Berupa tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$  yang merupakan satuan unit terkecil.

b) Unit pembangun sekunder (UBS)

Terbentuk dari rangkaian unit pembangun primer dengan cara setiap satu atom oksigen secara bersama sebagai sudut dua tetrahedral, membentuk cincin tunggal maupun ganda dengan 4, 5, 6, dan 8 tetrahedral.

c) Unit pembangun tersier / Unit –Unit Polihedral Simetris

Struktur ruang terbentuk dari ikatan unit pembangun sekunder satu sama lain dengan berbagai kombinasi. Kristal zeolit merupakan rangkaian tiga dimensi unit tersier tersebut.

### 2.2.3. Sifat Khas Zeolit<sup>25,27,28,29</sup>

Karena sifat fisika dan kimia dari zeolit yang unik, sehingga dalam dasawarsa ini, zeolit oleh para peneliti dijadikan sebagai mineral serba guna. Sifat-sifat unik tersebut meliputi:

### 1. Dehidrasi

Zeolit mempunyai sifat dehidrasi (melepaskan molekul  $H_2O$ ) apabila dipanaskan. Pada umumnya struktur kerangka zeolit akan menyusut. Tetapi kerangka dasarnya tidak mengalami perubahan secara nyata. Disini molekul  $H_2O$  seolah-olah mempunyai posisi yang spesifik dan dapat dikeluarkan secara reversibel.

### 2. Adsorben dan penyaring molekul

Sifat zeolit sebagai adsorben dan penyaring molekul, dimungkinkan karena struktur zeolit yang berongga, sehingga zeolit mampu menyerap sejumlah besar molekul yang berukuran lebih kecil atau sesuai dengan ukuran rongganya.<sup>28</sup> Selain itu kristal zeolit yang telah terdehidrasi merupakan adsorben yang selektif dan mempunyai efektivitas adsorpsi yang tinggi.

### 3. Katalis

Kemampuan zeolit untuk mengkatalisis suatu reaksi kimia terutama berhubungan dengan sifatnya sebagai padatan asam karena adanya situs-situs asam, baik situs asam Bronsted maupun Lewis. Sifat lain dari zeolit yang juga berpengaruh terhadap peranannya dalam katalisis adalah.<sup>25</sup>

a. Komposisi kerangka dan struktur pori zeolit; komposisi kerangka zeolit mengatur muatan kerangka dan mempengaruhi stabilitas termal dan asam dari zeolit.

b. Kenaikan rasio Si/Al akan berpengaruh pada stabilitas zeolit terhadap temperatur tinggi dan lingkungan yang reaktif seperti naiknya keasaman.

c. Medan elektrostatis zeolit; keadaan ini menyebabkan interaksi adsorbsinya dengan molekul lain berubah-ubah.

d. Kekuatan asam dari situs asam Bronsted; akan bertambah dengan naiknya rasio Si/Al penurunan konsentrasi kation dalam zeolit

e. Perubahan struktur unit bangun sekunder dari zeolit; peran struktur pori zeolit sangat penting dalam proses katalisis karena pori inilah yang berperan sebagai mikroreaktor dan darinya dimungkinkan untuk mendapatkan reaksi katalitik yang diinginkan menurut aturan selektivitas bentuk.

#### 4. Penukar ion.

Sedangkan sifat zeolit sebagai penukar ion karena adanya kation logam alkali dan alkali tanah. Kation tersebut dapat bergerak bebas didalam rongga dan dapat dipertukarkan dengan kation logam lain dengan jumlah yang sama. Akibat struktur zeolit berongga, anion atau molekul berukuran lebih kecil atau sama dengan rongga dapat masuk dan terjebak<sup>22</sup>.

#### 2.2.4. Aktivasi Zeolit<sup>8</sup>

Untuk mengaktivasi suatu zeolit dapat dilakukan dengan 2 cara, yaitu:

##### a. Aktivasi secara Kimia

Dilakukan dengan cara perendaman dan pengadukan zeolit dalam suatu larutan asam atau basa. Tujuannya adalah untuk menghilangkan pengotor yang terdapat dalam rongga zeolit. Pengotor yang bersifat asam akan larut dengan pencucian menggunakan larutan basa, dan sebaliknya.

##### b. Aktivasi dengan Pemanasan

Dilakukan untuk memperoleh zeolit dengan pori-pori yang lebih terbuka karena pemanasan dapat menghilangkan air yang terikat secara fisika dan mengeluarkan senyawa-senyawa organik yang terdapat dalam rongga atau pori-pori zeolit. Proses pemanasan ini dilakukan pada suhu berkisar antara 100-400<sup>0</sup>C selama 2-3 jam tergantung besarnya pengotor yang ada dan stabilitas zeolit terhadap panas.

#### 2.2.5. Aplikasi Zeolit<sup>26</sup>

Seperti telah disinggung di atas, bahwa dalam dasawarsa ini, zeolit telah dimanfaatkan secara luas oleh masyarakat. Berikut adalah beberapa contoh aplikasinya :

Tabel 2.1<sup>26</sup>  
Aplikasi Zeolit

Bidang/Sektor	Aplikasi
Pertanian	Penetral keasaman tanah, meningkatkan aerasi tanah, sumber mineral pendukung pada pupuk dan tanah, serta sebagai pengontrol yang efektif dalam pembebasan ion amonium, <u>nitrogen</u> , dan <u>kalium</u> pupuk.
Peternakan	Meningkatkan nilai efisiensi nitrogen, dapat mereduksi penyakit lembuhg pada hewan ruminensia, pengontrol kelembaban kotoran hewan dan kandungan amonia kotoran hewan.
Perikanan	Membersihkan air kolam ikan yang mempunyai sistem resikurlasi air, dapat mengurangi kadar nirogen pada kolam ikan.
Energi	Sebagai katalis pada proses pemecahan hidrokarbon minyak bumi, sebagai panel-panel pada pengembangan energi matahari, dan penyerap gas freon.
Industri	Pengisi (filler) pada industri kertas, semen, beton, kayu lapis, besi baja, dan besi tuang, adsorben dalam industri tekstil dan minyak sawit, bahan baku pembuatan keramik.

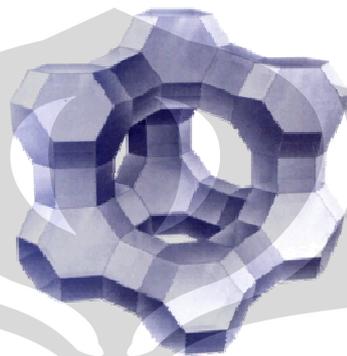
## 2.3. ZEOLIT X<sup>8,13</sup>

Beberapa tahun terakhir, perkembangan sintetik zeolit semakin pesat. Hal ini dikarenakan zeolit sintetik dapat dimanfaatkan lebih optimal sesuai kebutuhan. Kemurniaan yang tinggi, ukuran pori dan komposisi yang seragam menjadi dasar penggunaan zeolit sintetik. Salah satu zeolit sintetik yang sedang dikembangkan kegunaannya adalah zeolit X yang mempunyai kadar Si yang rendah. Zeolit X merupakan tipe zeolit sintetik yang termasuk dalam kelompok Faujasit (FAU) karena mempunyai topologi struktur kerangka yang sama walaupun keduanya merupakan spesi zeolit dengan karakteristik yang berbeda.<sup>8</sup> Zeolit X ini banyak digunakan sebagai katalis dalam berbagai proses industri.

### 2.3.1. Struktur Zeolit X<sup>8,13</sup>

Struktur kerangka aluminosilikat zeolit X dengan muatan negatif merupakan sistem pori tiga dimensi yang berisi kation penetral muatan dan memiliki cincin 6 tetrahedral yang membentuk prisma heksagonal cincin 6 ganda, D6R (6-2) yang mengandung 12 tetrahedral (Si,Al)O<sub>4</sub> dan cincin tunggal 4,6, dan 8 sebagai unti pembangun sekunder. Unit polihedral zeolit X terbentuk dari kerangka 26 hedron sehingga menghasilkan rongga yang lebih besar dengan diameter sebesar 13 Å. Unit zeolit X adalah kubus (tipe intan)

dengan dimensi sel yang besar, yaitu  $a=b=c=24,345 \text{ \AA}$  dan  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  dan mengandung 192 tetrahedral  $(\text{Si}, \text{Al})\text{O}_4$ . Struktur kerangka yang sangat stabil dan kaku/rigid menyediakan ruang besar dan mengandung 50% volume kristal terhidrasi.



Gambar 2.4  
Unit Polihedral Zeolit X<sup>19</sup>

### 2.3.2. Komposisi Kimia Zeolit X<sup>13</sup>

Komposisi kimia zeolit X bergantung dari metoda sintesis yang digunakan. Rumus kimia umum dari zeolit X adalah  $\text{Na}_{86}(\text{AlO}_2)_{86}(\text{SiO}_2)_{102} \cdot 264\text{H}_2\text{O}$ . Perbedaan kepolaran ditentukan oleh komposisi dan distribusi kation serta rasio Si/Al. Pada zeolit X, hubungan antara jumlah atom Al tetrahedral,  $N_{\text{Al}}$  dan rasio Si/Al adalah  $N_{\text{Al}} = 192/(1+R)$  dimana R adalah rasio Si/Al. Ion Al ( $N_{\text{Al}}$ ) dalam unit sel zeolit bervariasi dari 77 sampai 96 dan nilai rasio Si/Al dari 1 sampai 1,5. Dengan rasio Si/Al yang tergolong rendah (1-1,5) maka zeolit X masih tergolong polar, sehingga

mempunyai kapasitas pertukaran ion yang lebih besar dari pada kapasitas pertukaran ion zeolit dengan rasio Si/Al yang besar.

### 2.3.3. Proses Sintesis Zeolit X

Sintesis zeolit X dapat dilakukan melalui proses hidrotermal. Beberapa hal yang harus diperhatikan pada proses sintesis zeolit, yaitu bahan baku yang dapat berupa gel ataupun padatan amorf dimana merupakan sumber  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , hidroksida logam alkali pada pH tinggi dan basa kuat.

#### a. Bahan baku sintesis zeolit X<sup>8,36</sup>

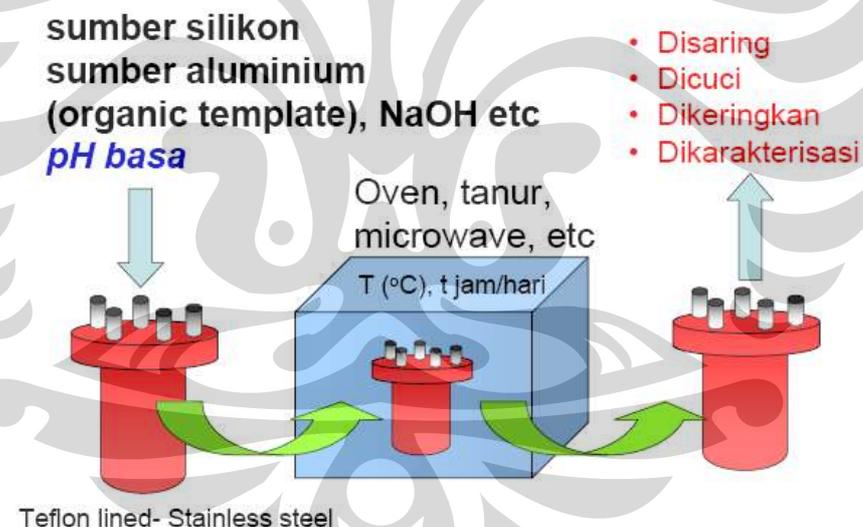
Dua bahan baku zeolit adalah silika dan alumina yang berada dalam bentuk aktif. Silika dapat diperoleh dalam bentuk natrium silikat (8,9wt%  $\text{Na}_2\text{O}$  dan 28,7 wt%  $\text{SiO}_2$ ), silika sol (ludox, 30-40 wt%  $\text{SiO}_2$ ), silika gel, ataupun dari sumber alam seperti kaolin sedangkan alumina dapat diperoleh dari garam aluminium seperti aluminium nitrat dan aluminium sulfat.

#### b. Proses hidrotermal

Merupakan metode konvensional yang umum digunakan untuk sintesis zeolit. Proses hidrotermal adalah proses kristalisasi gel natrium aluminium silikat dalam sistem hidrotermal tertutup pada suhu yang bervariasi antara suhu kamar sampai  $200^\circ\text{C}$ , untuk sintesis zeolit X biasanya kristalisasi dipakai mendekati suhu titik didih air ( $100^\circ\text{C}$ ).

Proses hidrotermal menggunakan air sebagai pelarut, menghasilkan tekanan uap air dari sistem tersebut sehingga kondisi sintesis mirip kondisi kerak bumi (earth's crust) dimana zeolit ditemukan. Biasanya campuran gel diletakan pada botol polipropilen (PP) karena sintesis dilakukan pada suhu  $\pm 100^{\circ}\text{C}$ . Sintesis hidrotermal zeolit X berhubungan dengan konversi campuran senyawa silika dan aluminium, kation logam alkali, molekul organik, dan air melalui larutan jenuh alkalin menjadi kristal mikropori aluminasilikat<sup>22</sup>.

### Sintesis hidrotermal:



Gambar 2.5  
Proses Sintesis Zeolit X Secara Hidrotermal<sup>36</sup>

c. Faktor yang mempengaruhi sintesis

Proses kimia dari sintesis zeolit X dipengaruhi oleh gangguan senyawa pengotor atau impurities dalam bahan baku. Pengotor tertentu dapat ikut membentuk inti kristal dalam kisi aluminasilikat, sehingga mengganggu struktur zeolit. Kontaminasi juga dapat terjadi selama proses sintesis sehingga dianjurkan menggunakan piranti dari plastik (polipropilen atau Teflon) dalam setiap pembuatan larutan dan pencampuran reaktan. Variabel-variabel sintesis yang sangat penting adalah pH larutan, waktu penuaan (aging), waktu kristalisasi, suhu dan volume air pada proses hidrotermal.<sup>36</sup>

#### 2.4. KATALIS

Katalis merupakan zat yang mempercepat laju reaksi suatu reaksi kimia dengan menyediakan suatu jalur pilihan dengan energi aktivasi yang lebih rendah, tanpa mengalami perubahan atau terpakai oleh reaksi itu sendiri.<sup>8</sup> Katalis mengurangi energi yang dibutuhkan untuk berlangsungnya reaksi.

Katalis dapat dibedakan ke dalam dua golongan utama, yakni katalis homogen dan katalis heterogen. Katalis heterogen adalah katalis yang ada dalam fase berbeda dengan pereaksi dalam reaksi yang dikatalisisnya, sedangkan katalis homogen berada dalam fase yang sama dengan pereaksi dalam reaksi yang dikatalisisnya.

Beberapa parameter suatu katalis yang baik adalah:<sup>37</sup>

1. Aktivitas, yaitu kemampuan katalis untuk mengkonversi reaktan menjadi produk yang diinginkan.
2. Selektivitas, yaitu kemampuan katalis mempercepat satu reaksi di antara beberapa reaksi yang terjadi sehingga produk yang diinginkan dapat diperoleh dengan produk sampingan seminimal mungkin.
3. Kestabilan, yaitu lamanya katalis memiliki aktivitas dan selektivitas seperti pada keadaan semula.
4. Yield, yaitu jumlah produk tertentu yang terbentuk untuk setiap satuan reaktan yang dikonsumsi.
5. Kemudahan diregenerasi, yaitu proses mengembalikan aktivitas dan selektivitas katalis seperti semula.

#### 2.4.1. Katalis Heterogen<sup>8</sup>

Pada umumnya katalis heterogen mengalami proses katalitik yang lebih rumit daripada katalis homogen karena fasenya yang berbeda.

Pada proses katalisis heterogen terjadi tahapan reaksi sebagai berikut:

1. Transport reaktan ke permukaan katalis.
2. Interaksi antara reaktan dan katalis (adsorpsi).
3. Reaksi antara spesies-spesies teradsorpsi untuk menghasilkan produk.
4. Desorpsi produk dari permukaan katalis.

#### 5. Transport produk menjauhi katalis.

Tahap 1 dan 5 melibatkan transport fisik dan menempatkan porositas sebagai faktor penting. Pada tahap 2 dan 4 terdapat interaksi antara reaktan dan katalis yang melibatkan perubahan Kimia. Tahap 3 merupakan tahap penurunan energi aktivasi reaksi.

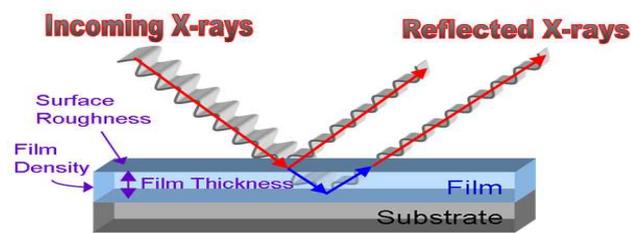
Satu contoh sederhana untuk katalisis heterogen yaitu bahwa katalis menyediakan suatu permukaan di mana pereaksi-pereaksi (atau substrat) untuk sementara terjerap. Ikatan dalam substrat-substrat menjadi lemah sedemikian sehingga memudahkan terbentuknya produk baru. Ikatan antara produk dan katalis lebih lemah, sehingga akhirnya terlepas.

Katalis heterogen dapat berupa logam, oksida logam dan zeolit. Pada penelitian kali ini akan digunakan zeolit X selaku katalis heterogen.

### 2.4.2. Karakterisasi Katalis

#### 2.4.2.1. Analisis Difaktometer Sinar-X (XRD)

Difraksi sinar-X digunakan untuk mengidentifikasi struktur kristal suatu padatan dengan cara membandingkan nilai  $d$  (jarak bidang kristal) dan intensitas puncak difraksi dengan data standard.<sup>8</sup>



Gambar 2.6  
Skema Kerja XRD<sup>19</sup>

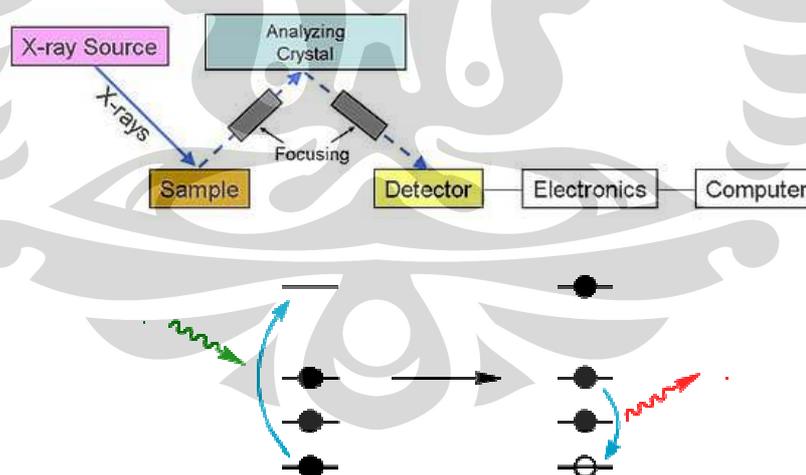
Proses pengukuran tersebut dilakukan dengan menembakkan sinar X ke material yang ingin dianalisis dengan sudut tertentu. Sinar X yang datang tersebut akan dipantulkan dalam bentuk hamburan yang terdifraksi. Untuk mencari nilai  $d$  dari hasil analisa tersebut digunakan persamaan Bragg:

$$n \cdot \lambda = 2d \cdot \sin(\theta)$$

Sinar X merupakan radiasi elektromagnetik dengan panjang gelombang sekitar 100 pm yang dihasilkan dari penembakan logam menggunakan elektron berenergi tinggi. Bila seberkas sinar X menumbuk permukaan bidang kristal maka sebagian sinar akan dihamburkan atau diteruskan ke lapisan bidang atom atau molekul lainnya.<sup>16</sup> Sinar X yang dihamburkan bersifat koheren dapat berinterferensi secara konstruktif atau destruktif. Interferensi konstruktif terjadi apabila berkas sinar X yang dihamburkan berada dalam keadaan satu fasa.

#### 2.4.2.2. Analisis Fluoresensi Sinar-X (XRF)

XRF digunakan untuk menentukan unsur kimia dalam suatu campuran. Analisis menggunakan XRF dilakukan berdasarkan identifikasi dan cacahan sinar-X yang terjadi dari efek fotolistrik. Efek fotolistrik terjadi karena elektron dalam target (sampel) terkena sinar berenergi tinggi. Bila energi sinar tersebut lebih tinggi daripada energi ikatan elektron dalam orbit K, L, atau M atom target, maka elektron atom target akan keluar dari orbitnya. Dengan demikian, meninggalkan kekosongan pada kulit orbital tertentu. Kekosongan ini akan diisi oleh elektron yang berasal dari orbital yang lebih luar dengan pelepasan energi tertentu. Perubahan energi ini direkam oleh alat XRF dan menghasilkan spektrum dengan skala atomik<sup>8,14,18</sup>.



Gambar 2.7  
Skema Kerja XRF<sup>38</sup>

#### 2.4.2.3. ANALISIS BET

Brunauer, Emmet, dan Teller mencoba merevisi teori Isoterm Langmuir. Metode BET ini digunakan untuk menentukan surface area, total pore volume, dan average diameter dari suatu material berongga. Analisis menggunakan BET dilakukan dengan melakukan pemanasan terlebih dahulu pada material yang akan diuji. Hal ini berguna untuk menghilangkan kandungan air yang mungkin masih terjerap dalam pori/rongga material tersebut dan dilakukan proses vakum selama 1 hari. Kemudian material tersebut dialiri gas nitrogen untuk menentukan adsorpsinya. Diharapkan gas nitrogen tersebut dapat masuk dalam rongga material tersebut, sehingga adsorpsinya dapat digunakan untuk menentukan karakteristik yang diuji.

#### 2.5. REAKSI KATALITIK O-METILASI FENOL DENGAN METANOL

Reaksi yang terjadi antara fenol dan metanol dapat berupa reaksi O-metilasi membentuk anisol dan C-metilasi membentuk kresol.<sup>1,3</sup> Reaksi O-metilasi yaitu penambahan gugus metil yang terjadi pada atom O pada gugus hidroksi pada fenol sedangkan reaksi C-metilasi yaitu penambahan gugus metil pada ikatan rangkap C=C yang terdapat pada fenol.<sup>2</sup> Reaksi O-metilasi dapat terjadi dengan adanya katalis basa sedangkan C-metilasi dapat terjadi dengan katalis asam.<sup>1,3</sup>

Zeolit X merupakan zeolit basa karena adanya kation-kation alkali dan alkali tanah didalam rongga strukturnya dan mempunyai selektifitas hasil konversi yang baik. Oleh sebab itulah dalam penelitian kali ini dilakukan reaksi O-metilasi menggunakan zeolit X.<sup>2</sup>

Dalam penelitian yang telah dilakukan sebelumnya, telah dipelajari reaksi katalitik O-metilasi fenol menjadi anisol dalam fasa cair dan fasa uap dengan sumber metilasi yaitu dimetilkarbonat dan pelarut dimetilsulfoksida untuk menjaga suhu reaksi 165<sup>0</sup>C.<sup>1,3</sup> Didapati hasil bahwa selektifitas terbentuknya anisol lebih tinggi dalam fasa cair<sup>1,3</sup>. Studi reaksi katalitik O-metilasi fenol menjadi anisol dengan menggunakan sumber metilasi metanol juga telah dilakukan.<sup>8</sup>

#### 2.5.1. Analisis Hasil Uji Katalitik dengan Kromatografi Gas<sup>8</sup>

Proses pemisahan komponen-komponen sampel dalam kromatografi gas berlangsung di dalam kolom berdasarkan pada interaksi komponen sampel dan fasa diam. Interaksi tersebut dapat berupa absorpsi atau partisi. Jika fasa diamnya berupa padatan berpori maka peristiwanya adalah absorpsi dan bila fasa diamnya berupa cairan peristiwanya adalah partisi gas cair.

Interaksi antara sampel dengan fasa diam sangat menentukan berapa lama komponen-komponen sampel akan tertahan. Komponen-komponen yang mempunyai afinitas lebih rendah terhadap fasa diam akan keluar dari

kolom terlebih dahulu, sedangkan komponen-komponen dengan afinitas lebih besar terhadap fasa diam akan keluar dari kolom kemudian.

Faktor-faktor yang mempengaruhi pemisahan dalam kromatografi gas antara lain adalah:

1. Kemudahan menguap suatu komponen.
2. Polaritas komponen.
3. Temperatur kolom.
4. Polaritas kolom.
5. Laju alir gas pembawa.
6. Panjang kolom.

Dalam kromatografi gas dikenal istilah waktu retensi( $t_r$ ), yaitu waktu komponen sampel tertahan dalam kolom. Waktu retensi setiap komponen dalam sampel adalah spesifik, dan dapat dipergunakan untuk penentuan analisis kualitatif suatu komponen.

#### 2.5.2. ANALISIS FT-IR<sup>10,19</sup>

Spektroskopi Inframerah (IR) merupakan satu jenis spektroskopi yang menggunakan daerah sinar inframerah dari spektrum elektromagnetik.

Spektroskopi inframerah ini dapat digunakan untuk mengidentifikasi suatu senyawa secara kualitatif (khususnya untuk mengidentifikasi gugus fungsi

senyawa-senyawa tersebut). Daerah inframerah ini, dalam spektrum elektromagnetik, terbagi menjadi 3 bagian, yakni:

1. Inframerah Jauh

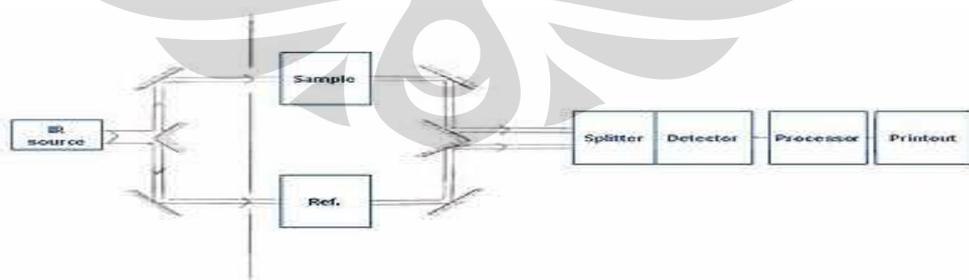
Daerah inframerah jauh ini berada pada rentang bilangan gelombang  $400-10\text{ cm}^{-1}$ . Memiliki tingkat energi yang rendah dan hampir mendekati daerah microwave. Dapat digunakan hanya untuk mengamati spektroskopi rotasi dari molekul-molekul.

2. Inframerah Sedang

Berada pada daerah  $4000-400\text{ cm}^{-1}$ . Dapat digunakan untuk mengamati spektroskopi vibrasi dari molekul-molekul. Merupakan daerah pengamatan yang paling sering digunakan secara umum.

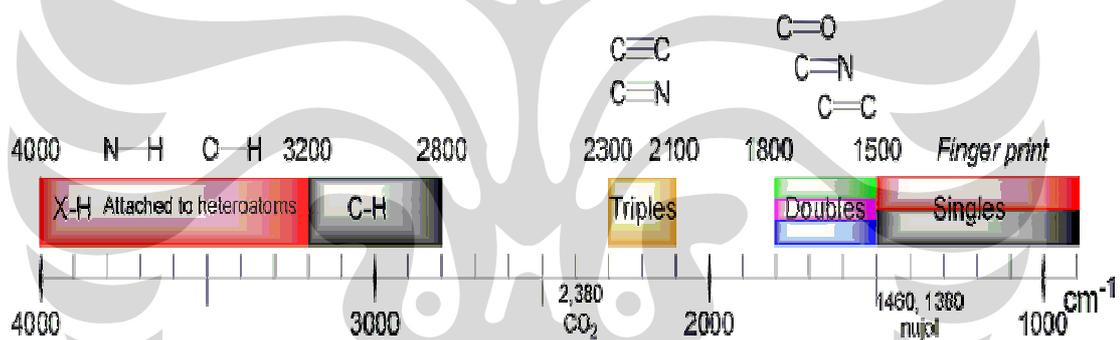
3. Inframerah Dekat

Berada pada daerah  $14000-4000\text{ cm}^{-1}$ . Merupakan daerah yang memiliki energi yang paling tinggi dibandingkan dengan daerah inframerah yang lain. Dapat digunakan untuk mengamati vibrasi harmonis dan overtone.



Gambar 2.8  
Skema Alat Inframerah Konvensional<sup>19</sup>

Fourier Transform Infrared (FTIR) merupakan teknik pengukuran untuk mengumpulkan spektrum inframerah. Berbeda dengan inframerah konvensional yang menyimpan jumlah energi yang diserap melalui monokromator, FTIR menggunakan interferometer. Interferometer ini memiliki fungsi yang hampir sama dengan monokromator. Hanya saja interferometer ini menyimpan jumlah energi yang diserap dan menghitungnya melalui pendekatan Deret Fourier. Ternyata diketahui bahwa hasil analisisnya mendekati analisis konvensional. Penggunaan interferometer ini lebih mudah, cepat, dan murah<sup>13</sup>.



Gambar 2.9  
Daerah Korelasi spektroskopi Inframerah<sup>19</sup>

## 2.6. MINYAK JAMBU METE<sup>17</sup>

Tanaman jambu mete (*Anacardium occidentale*. L) merupakan tanaman perkebunan yang sedang berkembang di Indonesia dan cukup menarik perhatian. Hal ini karena: pertama, tanaman jambu mete dapat ditanam di lahan kritis sehingga persaingan lahan dengan komoditas lain

menjadi kecil dan dapat juga berfungsi sebagai tanaman konservasi; kedua, tanaman jambu mete merupakan komoditas ekspor, sehingga pasar cukup luas dan tidak terbatas pada pasar domestic; ketiga, usaha tani, perdagangan dan agroindustri mete melibatkan banyak tenaga kerja.

Sebagai hasil/ produksi utama tanaman mete adalah gelondong mete, hasil samping buah semu mete yang dapat dimanfaatkan sebagai bahan baku industri rumah tangga yang sampai saat ini belum banyak dimanfaatkan secara optimal.

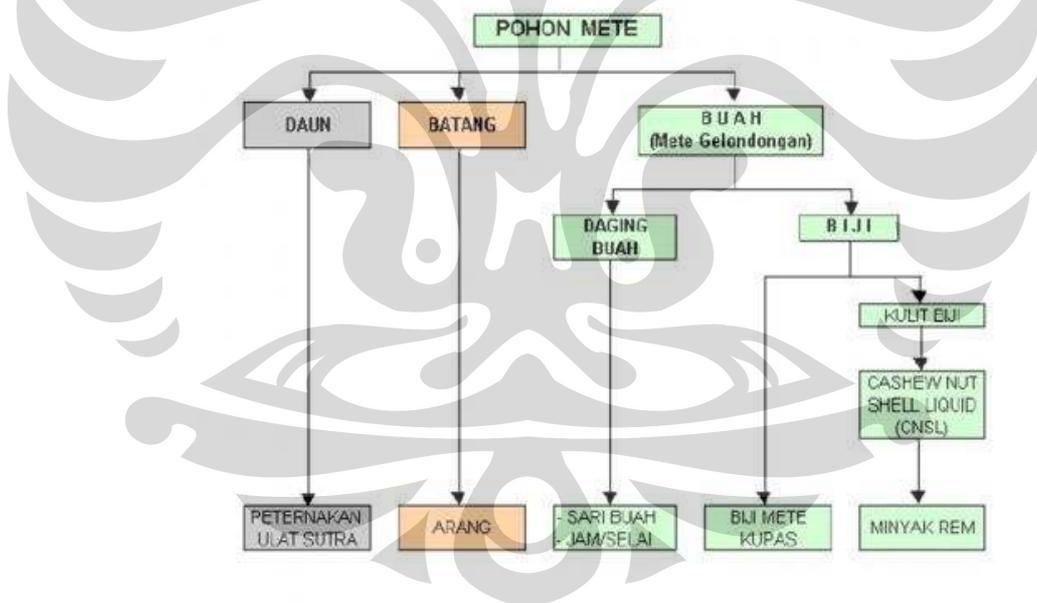
Di Indonesia pemanfaatan buah semu jambu mete masih sangat terbatas baik dalam jumlah maupun bentuk produksinya. Pada beberapa daerah tertentu umumnya dikonsumsi dalam bentuk buah segar dan produk olahan tradisional. Diperkirakan, dari produksi buah jambu mete hanya sekitar 20 % yang sudah dimanfaatkan secara tradisional, misal dibuat rujak, dibuat abon dan sebagainya sedangkan sisanya 80 % masih terbuang sebagai limbah.

Ditinjau dari segi nilai gizi dan komposisi kimianya, buah semu jambu mete merupakan salah satu sumber vitamin dan mineral. Kadar vitamin C nya cukup tinggi, yaitu ( 147 – 372 mgr/ 100 gr ) kira – kira 5 kali vitamin C buah jeruk. Selain itu juga mengandung cukup vitamin B1, B2 dan niasin.

Kandungan mineralnya terutama unsur P terdapat dalam jumlah yang cukup., juga buahnya mengandung karbohidrat yang sebagian besar terdiri dari gula reduksi ( 6,7 – 10,6 % ) dan pektin serta bersifat Juicy karena banyak mengandung air. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa buah semu jambu

mete mempunyai potensi ekonomi yang cukup tinggi, sehingga dapat diolah menjadi berbagai produk makanan dan minuman seperti sari buah, selai, jelly, sirop, cuka, manisan dan dapat dibuat sebagai lauk pauk abon.

Hampir semua bagian dari tanaman jambu mete dapat digunakan untuk berbagai keperluan. Hasil utama tanaman jambu mete adalah buahnya. Buah mete terdiri dari buah sejati (biji/gelondong mete) dan buah semu. Produk utama yang diambil dari tanaman jambu mete adalah bijinya (kacang mete), sedangkan buah semu jambu mete sering dianggap sebagai produk ikutan.



Gambar 2.10  
Skema Pemanfaatan Buah Jambu Mete<sup>17</sup>

Proses pengacipan biji glondong mete ini disamping menghasilkan kacang mete dan menghasilkan kulit mete (limbah kulit mete). Limbah kulit biji mete juga dapat diolah menjadi minyak CNSL (cashew nut shell liquid)

mempunyai nilai ekonomi tinggi, dapat digunakan sebagai bahan industri secara luas seperti minyak rem, industri cat, pernis dan lain – lain.

Buah semu mete secara keseluruhan terdiri atas daging buah yang lunak dan mengandung air dalam jumlah yang relatif banyak. Buah semu jambu mete sebenarnya merupakan tangkai yang mengembung.

Permasalahan atau kendala yang sering muncul dalam proses pengolahan jambu mete disebabkan oleh 3 jenis unsur pengganggu :

1. Senyawa tanin , senyawa ini yang menyebabkan rasa sepat hingga pahit pada buah jambu mete. Pada saat buah masih muda konsentrasi tanin sangat tinggi (maksimal) , namun makin tua akan makin berkurang dan pada saat matang (di pohon) konsentrasi tanin minimal.

2. Senyawa asam anakardat, senyawa asam anakardat merupakan senyawa yang sering menyebabkan rasa gatat-gatal ditenggorokan dan merangsang batuk. Asam anakardat merupakan senyawa yang menyusun 90% minyak jambu mete. Senyawa ini tersusun dari gugus fenil yang mengikat gugus hidroksi, gugus karboksilat, dan juga rantai alkil panjang.

3. Senyawa kardol, senyawa kardol merupakan senyawa yang menyebabkan cairan hasil perasan buah jambu mete berwarna kebiruan. Senyawa kardol merupakan senyawa yang hanya menyusun 10% minyak jambu mete. Senyawa kardol ini mirip dengan asam anakardat hanya saja gugus fenilnya tidak mengikat gugus karboksilat.

Oleh karena itu, sebelum buah jambu mete diolah lebih lanjut menjadi berbagai makanan dan minuman, ketiga unsur pengganggu tersebut yaitu

mengandung tanin penyebab rasa sepat, senyawa anakardat yang mengakibatkan rasa gatal di tenggorokan, dan senyawa polifenolat harus dinetralkan terlebih dahulu<sup>17</sup>.



## BAB III

### METODOLOGI PENELITIAN

#### 3.1. BAHAN DAN ALAT KIMIA

##### 3.1.1. Bahan-bahan kimia yang digunakan

Bahan-bahan yang digunakan adalah:

1. Kaolin yang berasal dari Bangka Belitung (dibawa oleh Dr. Riwandi Sihombing).
2. KOH (86%) dari Merck.
3. NaOH (97%) dari Merck.
4. Aquademin.
5. Fenol.
6. Metanol
7. Dimetilsulfoksida.
8. Anisol.
9. Etil Asetat.
10. Heksana

### 3.1.2. Alat-alat yang digunakan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. Neraca timbang analitis.
2. Crucible lid.
3. Tanur.
4. Beaker glass.
5. Magnetic stirrer.
6. Botol polipropilen.
7. Waterbath.
8. pH indikator.
9. Pompa vacuum.
10. Erlenmeyer hisap.
11. Kertas saring
12. Termometer dengan T maksimum = 200<sup>0</sup>C.
13. Labu datar leher dua.
14. Kondensor 2 buah yang bisa disambung.
15. Pompa air.
16. Hot plate.
17. Labu ukur ( 25 mL, 50 mL)
18. Kromatografi gas (Shimadzu)
19. FT-IR (Shimadzu)
20. XRD

21. XRF

22. BET (Quantachrome)

### 3.2. Sintesis Zeolit X<sup>8,41,42,43</sup>

Sintesis zeolit X diawali oleh proses aktivasi kaolin dengan cara memanaskan 100 gram kaolin pada suhu 750<sup>0</sup>C selama 24 jam dan menambahkan NaOH (50% berat kaolin) selanjutnya memanaskan lagi pada suhu 850<sup>0</sup>C selama 6 jam sehingga kaolin berubah menjadi metakaolin. Dilakukan uji XRD dan XRF terhadap kaolin dan metakaolin.

#### 3.2.1 Sintesis Zeolit X dengan Rasio Si/Al 1,33<sup>8</sup>

7,5 gram metakaolin dicampur dengan 14 gram NaOH, 6,73 gram KOH, dan 98,64 gram aquademin. Campuran diaduk selama 24 jam pada temperature lingkungan. Reaksi hidrotermal dilakukan pada suhu 90<sup>0</sup>C selama 72 jam dengan botol polipropilen. Zeolit yang terbentuk disaring dan dicuci dengan aquademin sampai pH di bawah 10 dan dikeringkan pada suhu 110<sup>0</sup>C selam 12 jam dalam oven.

### 3.2.2. Sintesis Zeolit X dengan Rasio Si/Al 1

7,5 gram metakaolin dicampur dengan 14 gram NaOH, 6,73 gram KOH, 8,4496 gram  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$  dan 98,64 gram aquademin. Campuran diaduk selama 24 jam pada temperatur lingkungan. Reaksi hidrotermal dilakukan pada suhu  $90^\circ\text{C}$  selama 72 jam dengan botol polipropilen. Zeolit yang terbentuk disaring dan dicuci dengan aquademin sampai pH di bawah 10 dan dikeringkan pada suhu  $110^\circ\text{C}$  selama 12 jam dalam oven.

### 3.3. Karakterisasi Zeolit X

Zeolit X hasil sintesis kemudian dikarakterisasi menggunakan XRD, XRF, dan BET. XRD dilakukan di laboratorium XRD PTBIN-BATAN Serpong. Karakterisasi XRF dilakukan di laboratorium XRF Material Science Salemba. Sementara analisis BET dilakukan di LEMIGAS dengan menggunakan alat Quantachrome. Adapun kondisi alatnya adalah:

Outgas time : 3 jam

Waktu analisis : 171,2 menit

Temperatur Bath : 273 K

Temperatur Outgas : 573 K

Gas Analisa : Nitrogen

Deskripsi Sampel : Bubuk

Berat Sampel : 0,2 gram

### 3.4. Perakitan Mikroreaktor Katalis Uji katalitik Fasa Cair

Gambar dapat dilihat pada lampiran 14.

### 3.5. Uji katalitik Zeolit X<sup>8</sup>

Campuran reaktan (Fenol dan Metanol) dengan perbandingan mol 1:20 dimasukkan ke dalam reaktor katalitik. Selanjutnya ditambahkan pelarut DMSO dengan perbandingan berat pelarut dan campuran reaktan 10:1. Zeolit X sebanyak 10% berat reaktan dicampurkan ke sistem dan dimasak selama variasi waktu tertentu dan dengan suhu 155°C. Dalam penelitian ini, dilakukan variasi waktu reaksi, yakni, 6 jam, 10 jam, 14 jam, 18 jam, dan 24 jam. Variasi waktu ini dilakukan untuk masing-masing zeolit X (rasio Si/Al=1,33 dan 1). Setelah didapatkan kondisi waktu optimum, dilakukan variasi penggunaan berat katalis. Berat katalis zeolit X yang digunakan baik rasio Si/Al=1,33 atau 1 adalah 5% berat reaktan, 10% berat reaktan, 15% berat reaktan, dan 25% berat reaktan pada waktu optimum.

Dilakukan pula reaksi O-metilasi pada minyak jambu mete. Minyak jambu mete dan metanol dimasukkan dalam reaktor katalitik dengan perbandingan molar 1:20, selanjutnya ditambahkan pelarut DMSO dengan perbandingan berat pelarut dan campuran reaktan 10:1. Zeolit X yang digunakan adalah sebesar berat katalis optimum dengan kondisi waktu optimum pula.

### 3.6. Analisis Hasil Uji Katalitik

Hasil uji katalitik untuk fenol dan metanol dianalisa menggunakan alat kromatografi gas. Kromatografi gas yang digunakan adalah Shimadzu yang terdapat di Departemen Kimia UI, adapun kondisi alatnya adalah:

Sampel Injeksi	: 1FL
Kolom	: Polyethyleneglycol (PEG)
Gas Pembawa	: N <sub>2</sub>
Total Flow	: 50mL/menit
Suhu Injektor	: 200 <sup>0</sup> C
Suhu Kolom	: 190 <sup>0</sup> C
ATTN	: 2

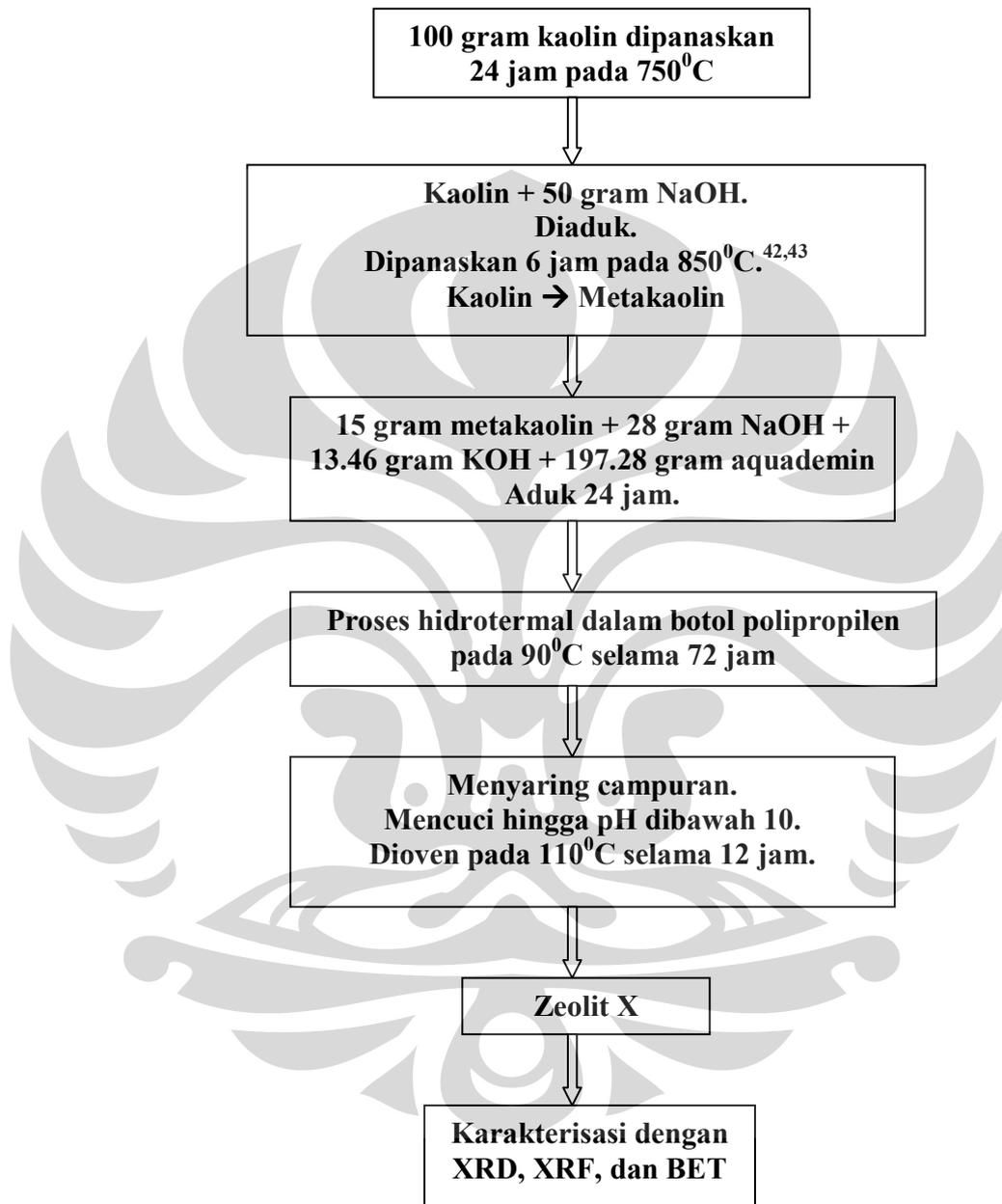
Sedangkan hasil uji katalitik pada minyak jambu mete dianalisis secara kualitatif dengan menggunakan FTIR Shimadzu di Departemen Kimia UI.

Kondisi alatnya adalah:

Interferometer	: Michelson interferometer (sudut datang =30 <sup>0</sup> C)
Sistem Optikal	: Single Beam
Pemisah Sinar	: Ge yang dilapisi dengan KBr (standard)
Sumber Sinar	: Nernst Glower (Cooling type ceramic system)
Resolusi	: 0,5cm <sup>-1</sup> , 1cm <sup>-1</sup> , 2cm <sup>-1</sup> , 4cm <sup>-1</sup> 8cm <sup>-1</sup> , 16cm <sup>-1</sup>
Akurasi wavenumber	: ± 0,125cm <sup>-1</sup>
Rasio S/N	: 40000:1

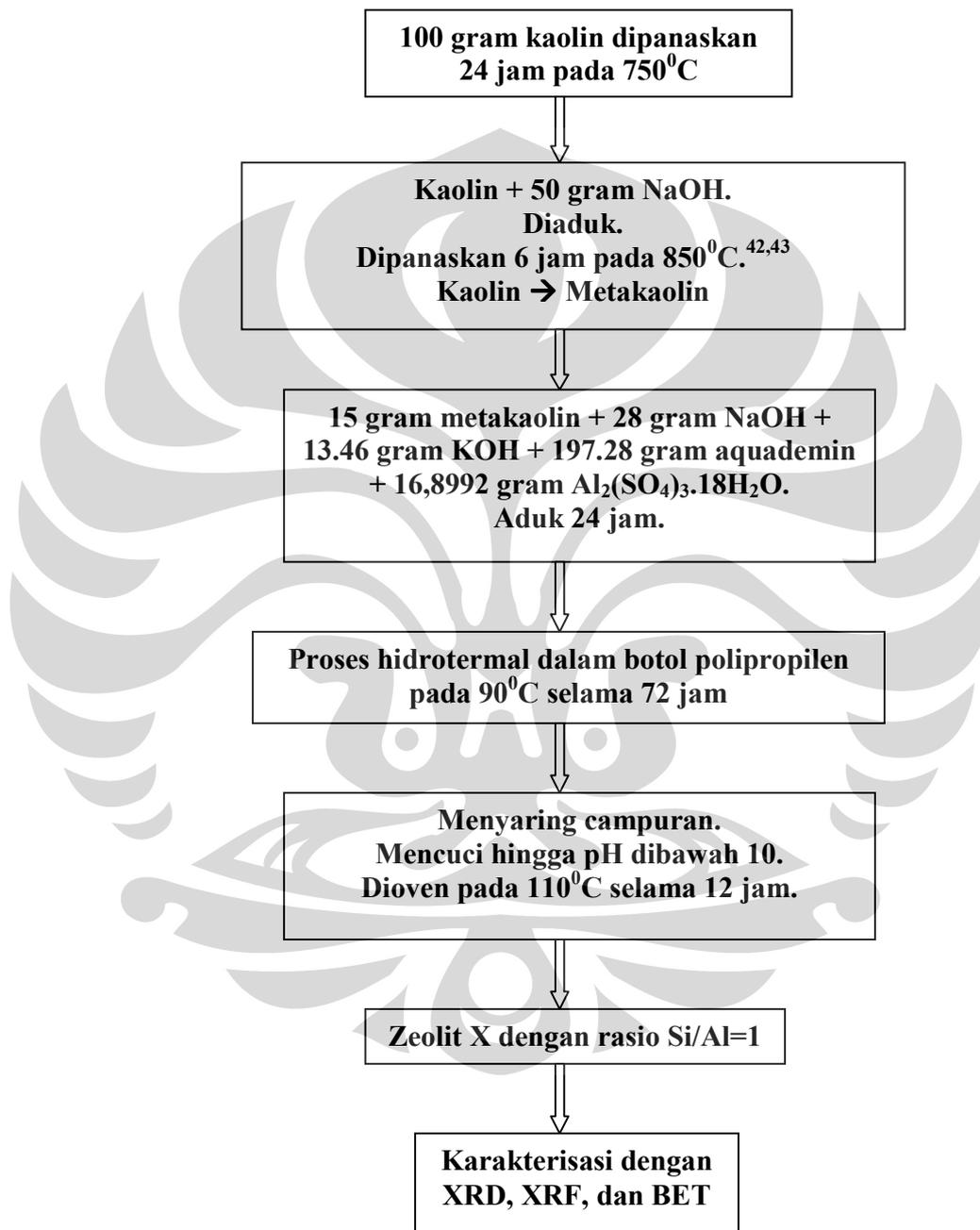
## Bagan Kerja

## Sintesis Zeolit X

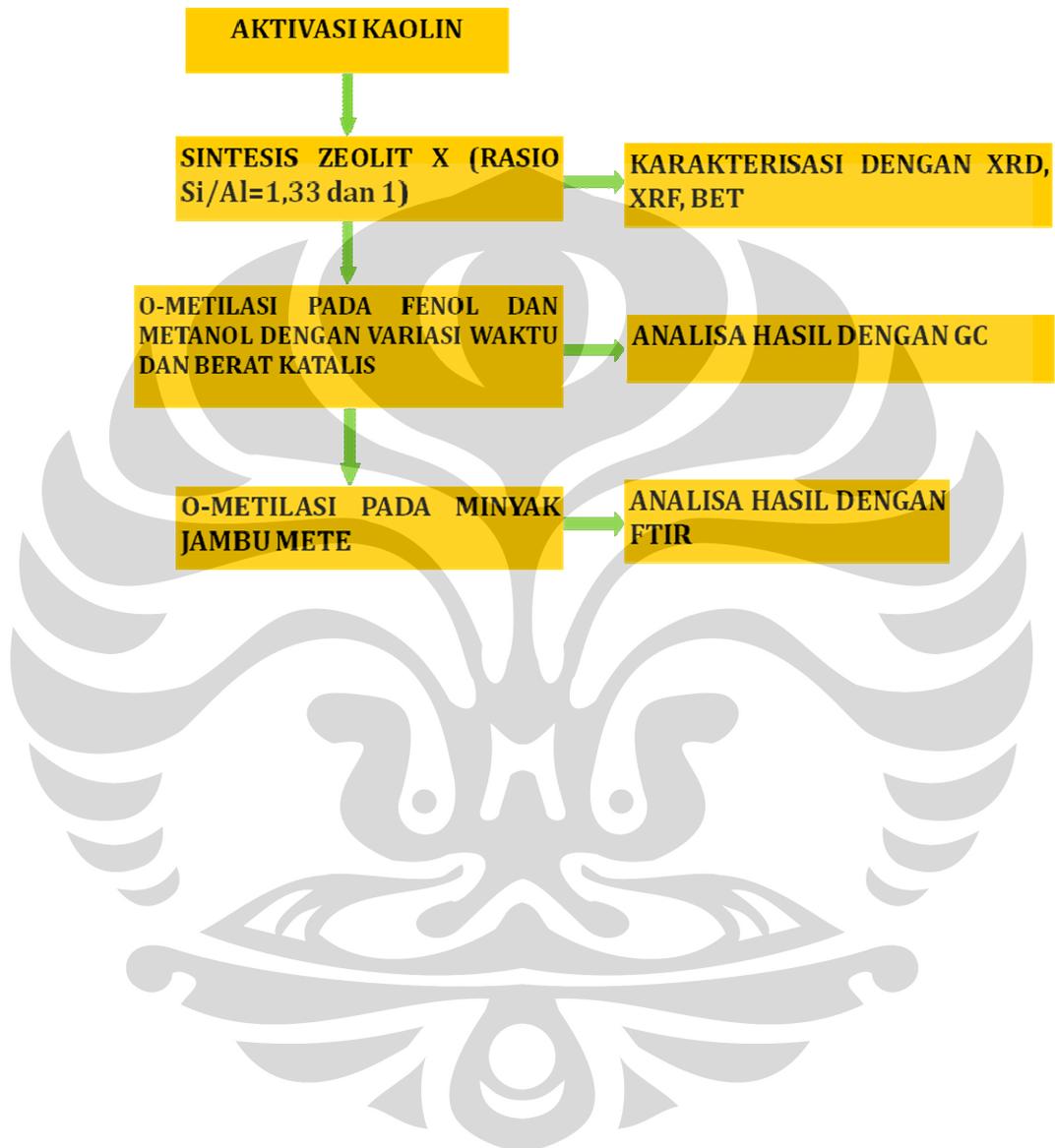


## Bagan Kerja

Sintesis Zeolit X dengan Rasio Si/Al=1



## Bagan Kerja Penelitian



## BAB IV

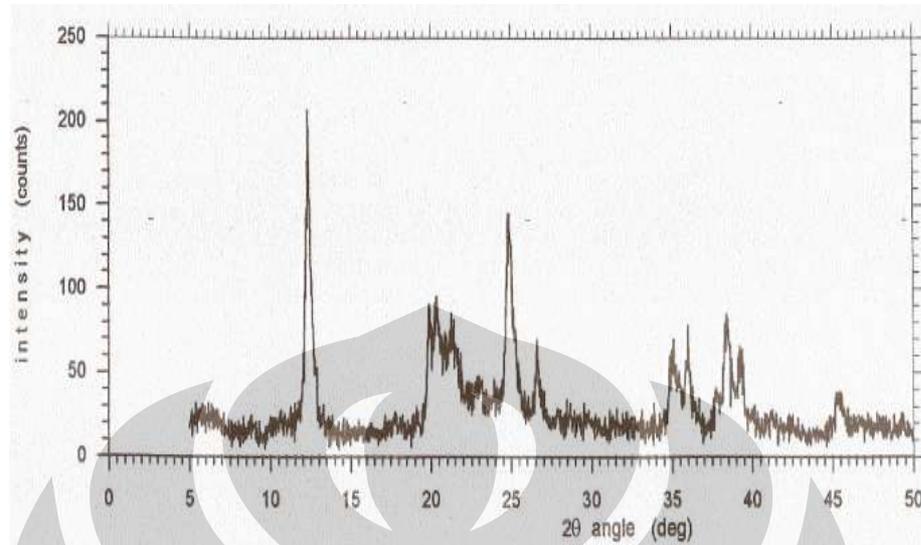
### PEMBAHASAN

#### 4.1. KARAKTERISASI KAOLIN DAN METAKAOLIN<sup>8,39</sup>

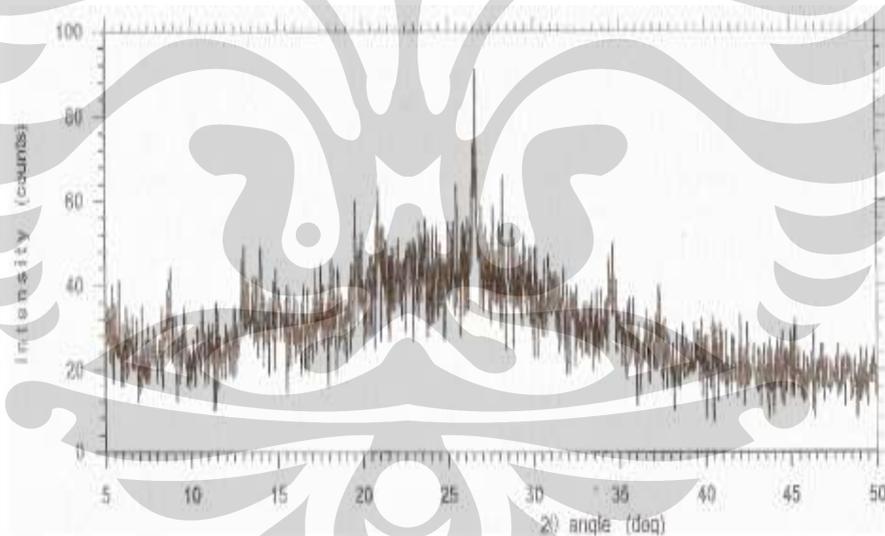
##### 4.1.1. Analisis XRD<sup>8,41</sup>

Kaolin merupakan mineral alam yang komposisi kimia utamanya terdiri dari kandungan  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Kedua komponen ini sangat penting dalam sintesis zeolit karena merupakan bahan utama pembentuk zeolit yang akan menentukan rasio Si/Al zeolit yang terbentuk. Untuk melakukan sintesis zeolit X diperlukan kaolin dengan rasio Si/Al yang rendah ( $\pm 1,5$ ).

Pada penelitian ini kaolin yang digunakan berasal dari Bangka Belitung. Kaolin tersebut, oleh Ari Fajar Riyanto dan Rian Pratama Akba pada tahun 2006, telah dikarakterisasi menggunakan XRD untuk mengetahui bentuk dari struktur kristal kaolin. Analisa ini dilakukan di Laboratorium XRD PT-BIN BATAN. Difraktogram XRD Kaolin ini diberikan pada Gambar 4.1..



Gambar 4.1  
Difraktogram XRD Kaolin<sup>8,41</sup>



Gambar 4.2  
Difraktogram XRD Metakaolin<sup>8,41</sup>

Dari difraktogram XRD kaolin tersebut dapat teramati bahwa terdapat 2 puncak yang merupakan karakteristik khas dari kaolin. Kedua puncak

tersebut merupakan puncak yang memiliki intensitas paling tinggi. Kedua puncak tersebut didapati pada  $2\theta = 12,338$  dan  $2\theta = 24,876$ . Teramati pula bahwa dalam kaolin tersebut terdapat pengotor mika/kuarsa. Hal ini terlihat pada daerah  $2\theta = 19-22$  dan  $2\theta = 26,591$ .

Sebelum digunakan sebagai bahan baku pembuatan zeolit X, pada kaolin tersebut haruslah dilakukan proses aktivasi, sehingga kaolin dapat berubah menjadi metakaolin. Proses aktivasi ini digunakan untuk memutus struktur kaolin yang ikatan antara aluminium dan silikanya sangat kuat, Proses pemutusan ikatan tersebut dilakukan dengan pemanasan (kalsinasi) pada suhu  $750^{\circ}\text{C}$  selama 24 jam. Dengan proses kalsinasi ini, diharapkan terbentuk struktur semikristalin/amorf sehingga lebih reaktif untuk digunakan sebagai bahan dasar pembuatan zeolit X.

Selanjutnya dilakukan kembali proses kalsinasi terhadap kaolin pada suhu  $850^{\circ}\text{C}$  selama 6 jam disertai dengan penambahan NaOH. Hal ini dimaksudkan agar dapat terjadi transformasi termal dari fasa inert menjadi fasa aktif dapat memberikan hasil yang lebih efektif sehingga akhirnya terbentuk metakaolin.

Analisa XRD dari metakaolin yang terbentuk dilakukan oleh Rian Pratama Akba dan Ari Fajar Riyanto pada tahun 2006 dan ditunjukkan pada Gambar 4.2. Difraktogram metakaolin tersebut menunjukkan telah terjadi konversi kaolin menjadi metakaolin setelah proses kalsinasi, terlihat dengan sudah tidak ada lagi puncak karakterisasi khas kaolin pada  $2\theta = 12.338$  dan  $2\theta = 24.876$ . Metakaolin diidentifikasi bersifat amorf yaitu dengan

pertumbuhan pola amorf pada  $2\theta = 30-50$ . Selain itu, pengotor mika/kuarsa masih terdapat pada puncak difraksi daerah  $2\theta = 19-22$  dan  $2\theta = 26-27$ .

#### 4.1.2. Analisis XRF<sup>8,41</sup>

Analisis dengan XRF juga dilakukan untuk mengetahui komposisi kimia kaolin baik secara kualitatif maupun kuantitatif. Analisa XRF ini juga telah dilakukan pada tahun 2006 oleh Rian Pratama Akba dan Ari Fajar Riyanto, dan diberikan pada tabel 4.1.

Tabel 4.1  
Data XRF Kaolin<sup>8,41</sup>

Atom	Berat(%)	Atom/mol(%)
Al	35,00	36,97
Si	57,68	58,54
K	3,26	2,38
Ti	0,61	0,36
Fe	3,39	1,73
Y	0,06	0,02

Hasil grafik XRF kaolin menunjukkan adanya logam Al, Si, K, Ti, Fe, dan Y. Analisa kuantitatif masing-masing logam mengungkapkan bahwa rasio Si/Al dari kaolin tersebut adalah sebesar 1,58. Pengotor kaolin yang utama adalah oksida logam seperti  $Fe_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$  ini dapat mempengaruhi struktur

zeolit X yang terbentuk karena logam Fe tidak hanya mempengaruhi warna permukaan zeolit tetapi jika kadarnya terlalu tinggi maka dapat ikut serta membentuk inti kristal zeolit menggantikan logam Si atau Al dalam kerangka tetrahedral zeolit. Kaolin yang digunakan dalam penelitian ini memiliki kadar Fe sebesar 3.39% berat. Kadar tersebut sangat kecil sehingga tidak berpengaruh besar terhadap struktur zeolit yang terbentuk. Pengotor lainnya adalah bercampurnya kaolin dengan mineral lain di alam, terutama mika/kuarsa.

Tabel 4.2  
Data XRF Metakaolin<sup>8,41</sup>

Atom	Berat(%)	Atom/mol(%)
Na	6,5340	7,9836
Al	33,7267	35,1123
Si	52,3789	52,3872
K	3,6312	2,6100
Ti	0,5967	0,3499
Cr	0,0327	0,0177
Mn	0,0065	0,0033
Fe	2,9849	1,5014
Rb	0,0745	0,0245
Y	0,0320	0,0101

Dari data XRF metakaolin dapat diketahui bahwa terdapat beberapa jenis logam, yaitu Na, Al, Si, K, Ti, Cr, Mn, Fe, Rb, dan Y pada metakaolin. Dari analisis kuantitatif didapati bahwa rasio Si/Al metakaolin sebesar 1,49 dan komposisi kimia metakaolin yang digunakan untuk mengetahui komposisi gel sebelum dilakukan proses hidrotermal.

Dari tabel tersebut terlihat analisa kualitatif metakaolin menunjukkan ketidaksesuaian terhadap logam yang terkandung di dalamnya. Hal ini terlihat dengan teridentifikasi logam baru yaitu Mn, Cr, dan Rb, yang sebelumnya tidak terkandung dalam kaolin. Padahal, untuk proses aktivasi kaolin menjadi metakaolin hanya ditambahkan NaOH saja. Kadar logam tersebut sangat kecil  $\pm 0,1\%$  sehingga dapat diabaikan. Kemungkinan kesalahan terjadi akibat pemakaian kontainer/wadah yang tercemar oleh zat-zat tersebut.

#### 4.2. KONDISI SINTESIS ZEOLIT X

Proses sintesis zeolit X dilakukan dalam larutan basa yaitu dengan mereaksikan metakaolin yang merupakan padatan amorf dengan hidroksida logam alkali yaitu campuran basa NaOH dan KOH yang berfungsi untuk:

1. Efek salting out, berdasarkan kecenderungannya untuk menjadi terhidrasi dan memodifikasi supersaturasi larutan.

2. Efek pembentukan struktur/efek pengarah struktur, yaitu menstabilkan dan mengarahkan anion aluminosilikat ke dalam konfigurasi tertentu sehingga mengarahkan proses nukleasi.

Campuran basa NaOH dan KOH digunakan dengan perbandingan tertentu karena telah dipelajari efek penggantian kation  $\text{Na}^+$  oleh  $\text{K}^+$  dimana pengikatan penggantian kation  $\text{K}^+$  maka laju nukleasi dan kristalisasi menurun sehingga terjadi peningkatan ukuran kristal yang terbentuk. Pada komposisi  $\text{K}=0$  yaitu hanya digunakan basa NaOH didapat kristal zeolit X dengan bentuk oktahedral sedangkan penggantian kation  $\text{K}^+$  didapatkan ukuran kristal yang bulat dengan waktu reaksi yang lebih singkat. Selain itu penambahan KOH diperlukan pada pembentukan zeolit X, karena tanpa adanya KOH maka zeolit yang akan terbentuk adalah zeolit A, yang merupakan zeolit berkadar Si rendah. Sedangkan rasio  $\text{K}_2\text{O}/\text{M}_2\text{O}$  sebesar 0.23. Pada penelitian sebelumnya<sup>42</sup>, rasio  $\text{K}_2\text{O}/\text{M}_2\text{O}$  yang dibutuhkan agar tidak terjadi pembentukan Kristal zeolit X yang disertai zeolit A berkisar antara 0,18-0,39.

Dalam sintesis zeolit X dengan rasio  $\text{Si}/\text{Al}=1$ , ditambahkan  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ . hal ini dimaksudkan untuk meningkatkan kadar Al dalam zeolit X yang disintesis, sehingga rasio  $\text{Si}/\text{Al}$  dari zeolit X yang terbentuk menjadi lebih rendah.

Pada sintesis zeolit X dalam penelitian ini dilakukan proses hidrotermal dengan botol polipropilen yang menyediakan sistem tertutup untuk proses zeolitisasi. Botol polipropilen ini tahan pada proses termal di bawah  $150^\circ\text{C}$ .

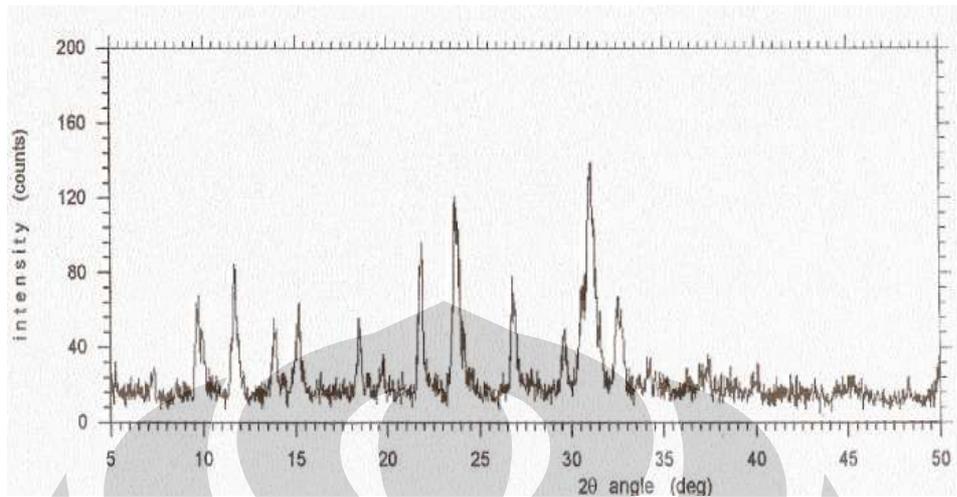
Pada proses hidrotermal yang dilakukan, digunakan waterbath yang diisi air dengan suhu dijaga konstan pada 90°C. Waktu proses hidrotermal yang dilakukan adalah selama 72 jam. Hal ini dilakukan agar waktu kontak antara metakaolin dengan reaktan lebih lama sehingga terbentuk zeolit dengan pertumbuhan kristal yang lebih baik.

Untuk kondisi pH, pada proses aging, pH campuran mencapai 14 bahkan lebih, karena reaktan (NaOH dan KOH) merupakan campuran basa kuat. Untuk itu perlu dilakukan proses pencucian sampai endapan yang dihasilkan mempunyai pH < 10, untuk menghilangkan kelebihan alkali. Komposisi gel yang digunakan yaitu: 3,83 Na<sub>2</sub>O : 1,17 K<sub>2</sub>O : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 2,97 SiO<sub>2</sub> : 118 H<sub>2</sub>O. Proses pengeringan endapan zeolit dilakukan pada 110°C, yang bertujuan untuk menghilangkan air.

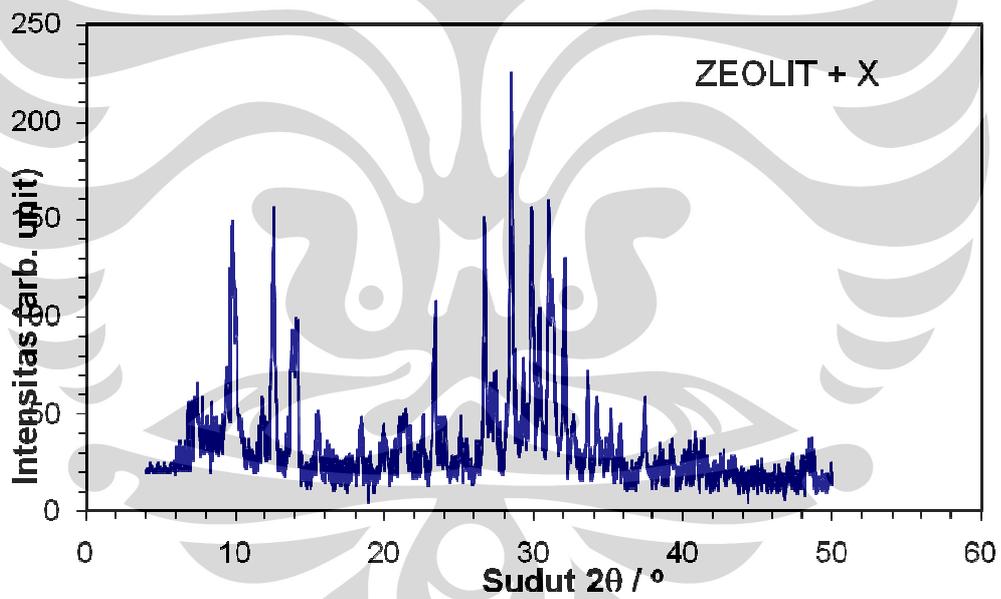
### 4.3. KARAKTERISASI ZEOLIT X

#### 4.3.1. Analisis XRD

Zeolit X yang dihasilkan kemudian dianalisis menggunakan XRD. Pada hasil analisis dengan menggunakan XRD, difraktogram yang dihasilkan oleh zeolit X hasil sintesis dibandingkan dengan difraktogram zeolit X standar. Zeolit X standar yang digunakan mempunyai rumus kimia :  
 $\text{Na}_{86}(\text{AlO}_2)_{86}(\text{SiO}_2)_{106} \cdot 264\text{H}_2\text{O}$ .



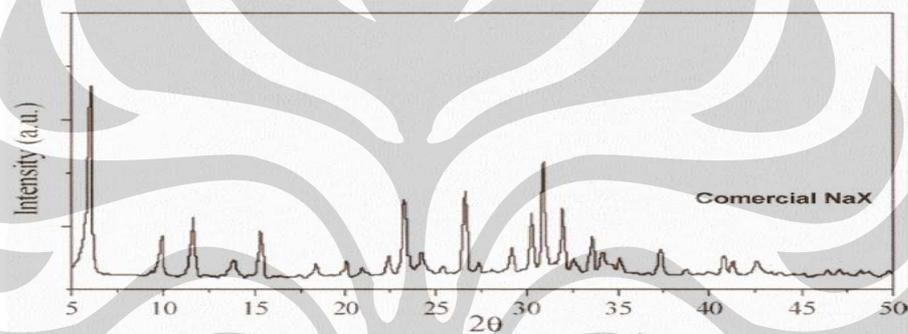
Gambar 4.3  
Difraktogram XRD Zeolit X (Rasio Si/Al=1,33)<sup>8</sup>



Gambar 4.4  
Difraktogram XRD Zeolit X (Si/Al=1)

Pada difraktogram zeolit X hasil sintesis, pola difraksi sudah menunjukkan kemiripan dengan pola difraksi pada difraktogram zeolit X

standar. Dari data zeolit X, baik dengan rasio Si/Al=1,33 ataupun 1 terlihat bahwa masih terdapat pengotor mika pada  $2\theta = 21,730$  dan  $27,160$ . Terlihat juga adanya pengotor zeolit A pada  $2\theta = 7,408$ . Hal ini disebabkan zeolit X dan zeolit A sama-sama terbentuk kristal pada proses sintesis (keduanya adalah zeolit dengan kadar Si rendah). Untuk zeolit X dengan rasio Si/Al=1,33, analisa XRD telah dilakukan oleh Ari Fajar Riyanto pada tahun 2006.



Gambar 4.5  
Difraktogram Zeolit X Standard

Dapat terlihat bahwa difraktogram XRD dari kedua jenis zeolit X memiliki kemiripan dengan data XRD standard dari zeolit X yang menunjukkan bahwa telah terbentuk zeolit X dari bahan dasar kaolin.

#### 4.3.2. Analisis XRF

Zeolit X yang diperoleh juga dianalisis menggunakan XRF, untuk menentukan secara kualitatif dan kuantitatif unsur-unsur yang menyusun

zeolit X tersebut. Dari data XRF inilah dapat diketahui rasio Si/Al dari zeolit X yang didapat.

Tabel 4.3  
Data XRF Zeolit X (Si/Al=1,33)<sup>8</sup>

Atom	Berat(%)	Atom/mol(%)
Na	11,8326	14,9967
Al	26,8395	28,9838
Si	37,2413	38,6357
K	21,3696	15,9240
Ti	0,4871	0,2963
Fe	2,2298	1,1634

Terlihat dari data XRF bahwa rasio Si/Al dari zeolit tersebut adalah 1,33.

Tabel 4.4  
Data XRF Zeolit X (Si/Al=1)

Atom	Berat(%)	Atom/mol(%)
Na	15,3981	18,5604
Al	24,7008	26,9854
Si	25,7821	28,0648
K	24,2724	18,3091
S	7,3530	6,7639
Fe	2,4936	1,3164

Terlihat bahwa rasio Si/Al yang diperoleh adalah 1,04. Hal ini menunjukkan bahwa telah terbentuk zeolit X dengan rasio Si/Al yang rendah. Terlihat pula dari data XRF bahwa terdapat atom S. Hal ini dimungkinkan terjadi karena dalam proses sintesis ditambahkan  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$  untuk memperoleh rasio Si/Al=1.

#### 4.3.3. Analisis BET

Selain dilakukan analisis XRD dan XRF terhadap zeolit X, juga dilakukan analisis BET terhadap zeolit X yang dihasilkan. Hal ini dimaksudkan untuk mengetahui surface area, total pore volume, dan average pore diameter dari zeolit X yang dihasilkan.

Tabel 4.5  
Hasil Analisis BET

	Surface Area	Total Pore Volume	Average Pore Diameter
Zeolit X (Si/Al=1,33)	128.91 m <sup>2</sup> /g	7.831e-02 cc/g	2.42995e+01 Å
Zeolit X (Si/Al=1)	13.74 m <sup>2</sup> /g	4.463e-02 cc/g	1.29895e+02 Å

Dari data BET tersebut terlihat bahwa terdapat perbedaan yang signifikan dari:

### 1. Surface Area kedua zeolit X

Surface area dari zeolit X dengan rasio Si/Al = 1,33 jauh lebih besar daripada zeolit X dengan rasio Si/Al=1. Hal ini mengindikasikan adanya perbedaan banyak rongga dari struktur kedua zeolit. Indikasi awal ini memperlihatkan bahwa zeolit X dengan rasio Si/Al = 1,33 memiliki rongga yang jauh lebih banyak dibanding dengan zeolit X dengan rasio Si/Al=1. Hal ini mengakibatkan terjadinya perbedaan surface area yang cukup besar.

### 2. Average pore diameter kedua Zeolit X

Average pore diameter ini sangat berhubungan dengan besar rongga yang terdapat pada struktur zeolit X. Diindikasikan bahwa zeolit X dengan rasio Si/Al=1,33 memiliki rongga yang lebih kecil bila dibandingkan dengan zeolit X (Si/Al=1). Akibatnya average pore diameternya pun menjadi lebih kecil.

Dari data BET tersebut dapat diprediksikan struktur zeolit X yang terbentuk, yakni:

#### 1. Zeolit X (Si/Al=1,33)

Memiliki banyak rongga dengan ukuran rongga yang kemungkinan kecil-kecil.

#### 2. Zeolit X (Si/Al=1)

Memiliki rongga yang sedikit tetapi rongga tersebut berukuran besar.

Perbedaan struktur kedua zeolit X dapat terjadi akibat pemanasan yang terlalu tinggi untuk dilakukannya analisa BET yakni pada suhu 300<sup>0</sup>C.

Pemanasan pada suhu yang cukup tinggi ini mengakibatkan terjadinya perubahan struktur kristal zeolit X. selain itu dapat juga disebabkan adanya defek selama proses sintesis yang mengganggu proses pertumbuhan kristal zeolit X.

#### 4.4. UJI AKTIVITAS DAN SELEKTIFITAS KATALIS

Kedua variasi zeolit X yang telah disintesis dari bahan dasar kaolin tersebut kemudian diuji aktivitas dan selektifitas katalitiknya dengan cara menggunakannya sebagai katalis dalam reaksi O-metilasi fenol dengan metanol menghasilkan anisol. Reaksi O-metilasi merupakan suatu reaksi dimana terjadi penambahan gugus metil pada atom oksigen yang terdapat pada gugus OH dari fenol.<sup>1</sup> Pada penelitian ini digunakan metanol sebagai sumber metil. Reaksi ini dapat terjadi bila adanya katalis basa, karena bila menggunakan katalis asam maka yang terjadi adalah reaksi C-metilasi. Hasil reaksi dari reaksi O-metilasi fenol dengan adanya metanol adalah anisol. Sedangkan bila terjadi reaksi C-metilasi, maka yang terbentuk bukanlah anisol melainkan kresol.<sup>3</sup>

Zeolit X digunakan sebagai katalis basa dalam reaktan fenol dan metanol. Zeolit X yang digunakan adalah zeolit X dengan rasio Si/Al =1,33 dan Si/Al=1. Komposisi zeolit X yang digunakan dalam reaksi adalah sebesar 10% dari berat reaktan. Dalam reaksi ini fenol merupakan pereaksi pembatas dan metanol adalah pereaksi yang berlebih jumlahnya, sehingga rasio molar

fenol:metanol yang digunakan adalah 1:20<sup>8</sup>. Dalam penelitian ini dilakukan variasi waktu reaksi dan berat katalis yang digunakan dalam reaksi. Kedua variasi ini dilakukan pada kedua jenis zeolit x yang disintesis (zeolit X dengan rasio Si/Al=1.33 dan zeolit X dengan rasio Si/Al=1). Hal ini digunakan untuk mengetahui kondisi optimum reaksi untuk tiap zeolit X.

Reaksi O-metilasi yang terjadi dilakukan dengan mencampurkan terlebih dahulu fenol, DMSO, dan zeolit X hingga suhu 55<sup>0</sup>C kemudian pada suhu tersebut dimasukkan metanol. Kemudian campuran dipanaskan hingga mencapai suhu 155<sup>0</sup>C. Pencampuran metanol tidak dilakukan bersamaan karena menyebabkan suhu reaksi tidak dapat maksimal akibat terjadinya penurunan titik didih oleh kehadiran metanol. Selain itu prinsip ini dilakukan pula untuk memperpanjang waktu kontak antara fenol selaku pereaksi pembatas dengan zeolit X selaku katalis, tanpa adanya persaingan dengan metanol sebagai sumber metil agar didapat hasil yang maksimal.

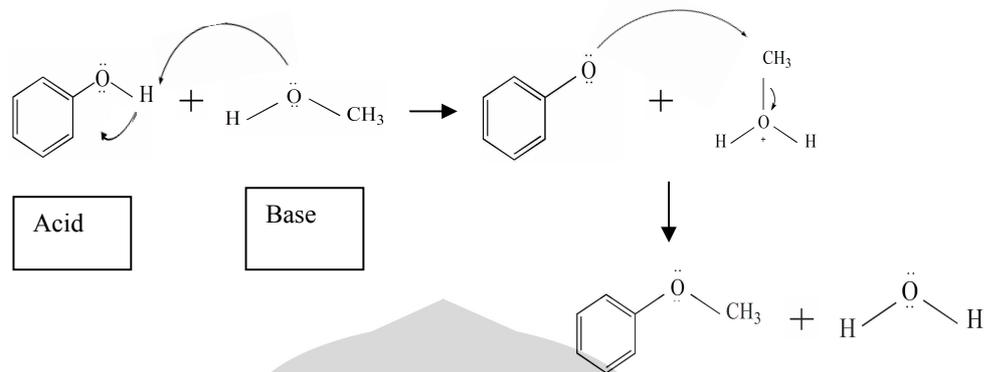
Reaksi O-metilasi yang terjadi dapat juga disebut sebagai reaksi dehidrasi alkohol karena pada produk reaksi dihasilkan juga H<sub>2</sub>O sebagai hasil samping.<sup>8</sup> Namun, jika sumber metilasi yang digunakan bukanlah metanol, melainkan dimetilkarbonat atau dimetilsulfat, maka tidak menghasilkan H<sub>2</sub>O sebagai hasil samping. Reaksi yang terjadi pun tidak dapat dikatakan sebagai reaksi dehidrasi alkohol.<sup>8</sup>

Interaksi yang terjadi antara fenol dan metanol dengan katalis zeolit X bersifat intermolekuler, karena diperlukan 2 molekul alkohol untuk membentuk eter dimana molekul alkohol yang terlibat dalam reaksi berasal

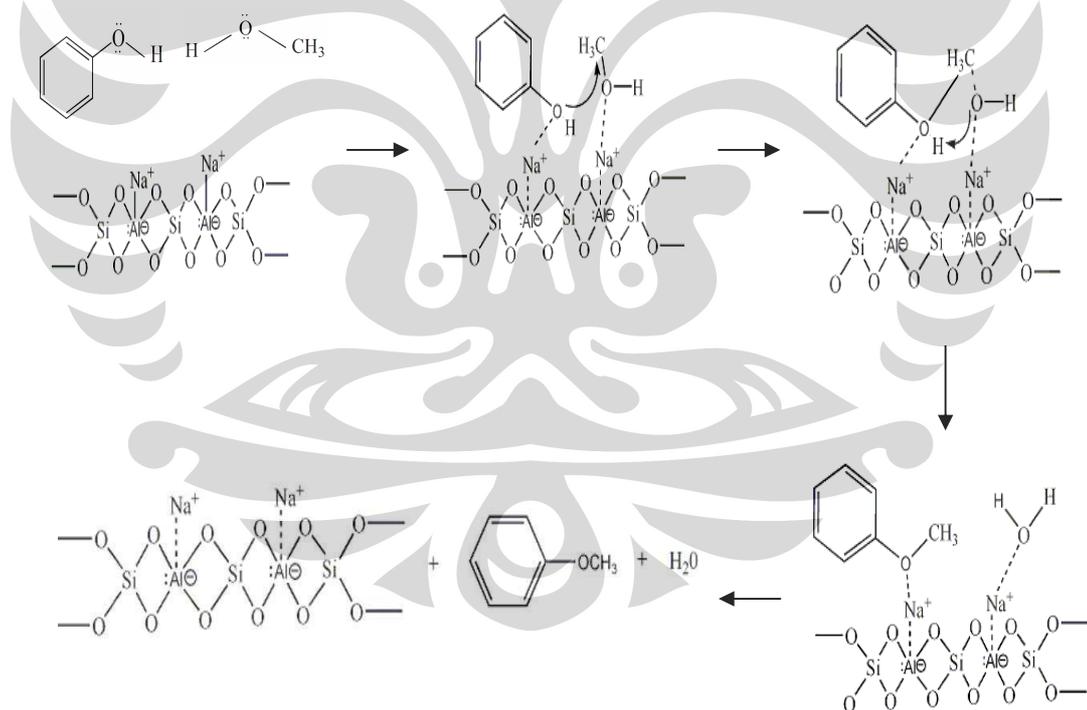
dari 2 jenis berbeda yaitu fenol dan metanol.<sup>1,3</sup> Pembentukan anisol dari campuran fenol dan metanol melalui mekanisme reaksi substitusi nukleofilik bimolekuler ( $SN_2$ ). Mekanisme reaksi yang diusulkan untuk reaksi katalitik O-metilasi fenol dengan metanol dapat dilihat pada gambar 4.7.

Pada reaksi tersebut, fenol dan metanol ketika berinteraksi dengan katalis zeolit X membentuk ion fenoksi untuk fenol dan ion metoksi untuk metanol dalam intermedietnya. Dalam hal ini, ion fenoksi bersifat lebih nukleofil (intermediet ion fenoksi ini terstabilkan oleh resonansi sehingga menjadi lebih reaktif) dibandingkan dengan ion metoksi sehingga penyerangan terjadi oleh ion fenoksi terhadap gugus metil yang terdapat pada metanol.

Jika tanpa menggunakan katalis zeolit X, molekul fenol juga akan membentuk ion fenoksi, namun energi aktivasi saat pembentukan ion fenoksi tanpa menggunakan katalis lebih tinggi dibandingkan dengan pembentukan ion fenoksi dengan menggunakan katalis zeolit X. Hal ini dikarenakan dengan adanya interaksi yang kuat antara ion alkali dengan atom O pada gugus hidroksi maka ikatan O-H menjadi lemah sehingga energi aktivasi pembentukan ion fenoksi akan menurun. Dalam reaksi tanpa katalis, molekul metanol yang bersifat cenderung basa akan menyerang fenol yang bersifat asam. Atom H dari fenol akan ditarik oleh atom O dari metanol, sehingga terbentuk intermediet ion fenoksi. Mekanisme reaksi yang diusulkan untuk reaksi O-metilasi tanpa adanya katalis dapat dilihat pada gambar 4.6.



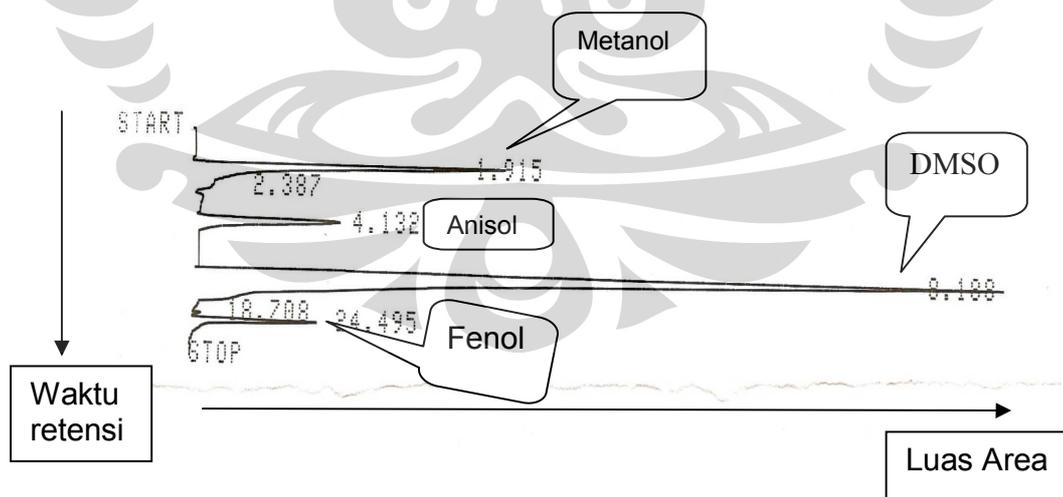
**Gambar 4.6**  
Mekanisme Reaksi O-metilasi tanpa Katalis yang Diusulkan



**Gambar 4.7.**  
Mekanisme Reaksi Katalisis O-metilasi yang Diusulkan

#### 4.4.1. Analisis Uji Katalitik dengan Kromatografi Gas (GC)

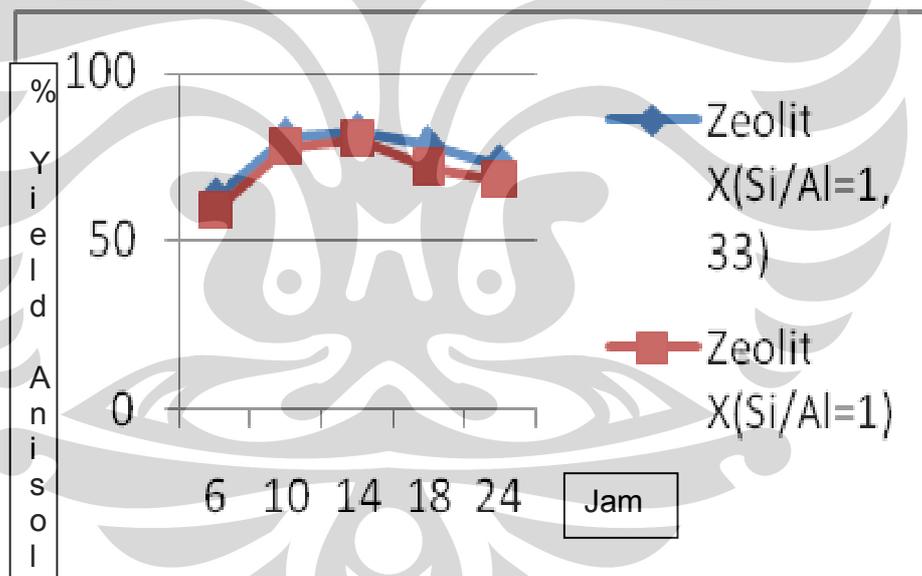
Hasil uji katalitik O-metilasi dengan menggunakan 2 jenis zeolit X dalam variasi waktu dan %berat katalis dianalisis dengan menggunakan kromatografi gas. Analisis ini dilakukan untuk mengetahui banyaknya fenol yang terkonversi dan banyaknya anisol yang terbentuk sehingga dapat diketahui % selektifitas anisol yang terbentuk dari banyaknya fenol yang terkonversi.<sup>8</sup> Untuk uji kualitatif, diinjeksikan terlebih dahulu fenol dan anisol standard. Hal ini akan dibandingkan dengan kromatogram sampel. Yang menjadi acuan perbandingan adalah waktu retensi. Untuk uji kuantitatif dilakukan dengan memvariasikan berbagai konsentrasi anisol dan fenol standard untuk dilihat hubungan antara luas area dan konsentrasi. Kemudian membandingkan luas area sampel dengan standard.



Gambar 4.8  
Contoh Kromatogram Hasil Uji Katalitik

Pada gambar tersebut dapat terlihat adanya 4 puncak yang memiliki waktu retensi yang berbeda. Puncak-puncak tersebut menunjukkan metanol (1,915); anisol (4,132); DMSO (8,180); dan fenol (24,495).

Dalam penelitian kali ini dilakukan reaksi O-metilasi fenol dengan metanol menggunakan katalis zeolit X, baik yang rasio Si/Al-nya=1,33 dan Si/Al=1. Reaksi yang dilakukan divariasikan menurut waktu. Variasi waktu yang digunakan adalah 6 jam, 10 jam, 14 jam, 18 jam, dan 24 jam. Hasil reaksi O-metilasi ditampung dalam fial dan kemudian dianalisa dengan kromatografi gas.



Gambar 4.9  
% Yield Anisol Berdasarkan Variasi Waktu

Berdasarkan grafik terlihat yield anisol dari hasil uji katalitik dengan menggunakan zeolit X dengan rasio Si/Al=1,33 maksimum sebesar 82,3%. Sedangkan dengan menggunakan zeolit X dengan rasio Si/Al=1 maksimum sebesar 80,5%.

Hal ini disebabkan karena karakteristik kedua zeolit X yang dihasilkan. Zeolit X dengan rasio Si/Al =1,33 memiliki banyak pori dengan diameter yang relatif mesopori, sehingga molekul reaktan banyak yang terperap dalam pori (jumlah pori banyak). Sedangkan zeolit X (Si/Al=1) memiliki pori lebih sedikit dengan ukuran yang makropori. Sehingga jumlah reaktan yang terperap pasti lebih sedikit. Namun hasil yield anisol antara kedua zeolit X tidak begitu jauh berbeda. Terlihat bahwa pada zeolit X (Si/Al=1) walaupun porinya sedikit, namun ukurannya besar sehingga banyak juga terdapat molekul reaktan yang terperap dalam porinya dan bereaksi membentuk produk. Selain itu, terdapat kecenderungan bahwa semakin besar rasio Si/Al suatu zeolit maka semakin bersifat nonpolar. Oleh karena itu, zeolit X dengan rasio Si/Al 1,33 bersifat lebih nonpolar dan akan lebih cepat dalam menjerap substrat yang memiliki sifat nonpolar pula. Zeolit X dengan rasio Si/Al yang lebih besar juga memiliki ketahanan terhadap temperatur tinggi. Reaksi O-metilasi dengan variasi waktu untuk mendapati waktu optimum.

Tabel 4.6  
 Hasil Reaksi O-metilasi dengan Menggunakan Zeolit X Berdasarkan  
 Variasi Waktu Reaksi

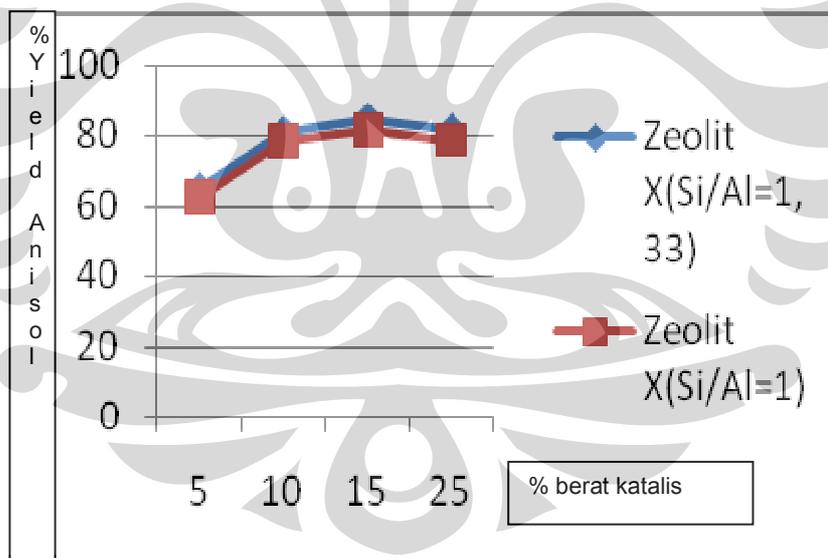
Zeolit X (Si/Al=1,33)				Zeolit X (Si/Al=1)			
Waktu (jam)	% Konver si Fenol	% Yield Anisol	% Selektifi tas Anisol	Waktu (jam)	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selekti fitas Anisol
6	63,1	62,8	99,5	6	59,5	59,0	99,1
10	81,4	80,8	99,3	10	79,1	78,2	98,9
14	83,7	82,3	98,3	14	81,9	80,5	98,3
18	86,9	78,4	90,2	18	83,6	72,2	86,4
24	87,3	72,8	83,4	24	85,4	68,1	79,7

Dari tabel tersebut terlihat bahwa kondisi waktu optimum yang menghasilkan %yield anisol dan %selektifitas yang optimum adalah pada kondisi waktu 10 jam. Pada waktu 6 jam, produk yang terbentuk masih sedikit. Hal ini terlihat dari % konversi fenol dan % yield anisol yang diperoleh sedikit (dibawah 65%) . Artinya, masih terdapat fenol dalam jumlah cukup besar yang belum sempat bereaksi dengan metanol untuk membentuk anisol, karena reaksi dihentikan.

Sedangkan pada kondisi waktu 14, 18, dan 24 jam terlihat bahwa %selektifitas dari katalis mulai menurun. Hal ini dikarenakan semakin lama waktu reaksi maka kemungkinan kontak antara fenol dan methanol untuk membentuk produk lain semakin besar; seperti terjadinya reaksi C-metilasi

menghasilkan kresol. Oleh karena itu, kondisi waktu optimum untuk melakukan reaksi O-metilasi adalah 10 jam.

Selain melakukan variasi berdasarkan waktu reaksi, juga dilakukan variasi berdasarkan berat katalis yang digunakan. Variasi yang dilakukan dalam penelitian ini adalah menggunakan katalis seberat 5%, 10%, 15%, dan 25% dari berat reaktan. Reaksi dilakukan menggunakan waktu optimum yang telah ditentukan sebelumnya, yakni 10 jam dan menggunakan katalis zeolit X baik yang rasio Si/Al-nya 1,33 maupun 1. Analisis ini diperlukan untuk menentukan berat katalis yang mempengaruhi jumlah produk yang dihasilkan.



Gambar 4.10  
% Yield Anisol Berdasarkan Variasi % Berat Katalis

Tabel 4.7  
 Hasil Reaksi O-metilasi Fenol dan Metanol Menggunakan Zeolit X  
 Berdasarkan Variasi Berat Katalis

Zeolit X (Si/Al=1,33)				Zeolit X (Si/Al=1)			
Berat katalis (%berat reaktan)	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektivitas Anisol	Berat katalis (%berat reaktan)	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektivitas Anisol
5%	65,8	65,2	99,1	5%	64,1	62,7	97,8
10%	81,4	80,8	99,3	10%	79,1	78,2	98,9
15%	85,4	84,6	99,1	15%	82,6	81,4	98,5
25%	84,3	81,5	96,7	25%	81,3	78,5	96,6

Dari hasil reaksi tersebut dapat teramati bahwa kondisi optimum yang diperoleh (dimana %yield anisol dan %selektifitas katalis paling besar) adalah ketika menggunakan %berat katalis 15%. Pada penggunaan katalis sebanyak 5% dan 10% berat reaktan belum cukup jumlahnya untuk menjerap reaktan (substrat) yang ada sehingga proses reaksi berjalan kurang optimal sehingga % yield anisol yang diperoleh pun menjadi kurang. Sedangkan pada penggunaan berat katalis 25% berat reaktan, katalis yang ada jumlahnya sangat berlebih hingga menghalangi reaktan untuk terjerap dalam rongga katalis tersebut. Akibatnya didapati % konversi, % yield anisol, dan %selektifitas katalis yang menurun.

#### 4.5. REAKSI O-METILASI YANG DILAKUKAN DENGAN MENGGUNAKAN MINYAK JAMBU METE

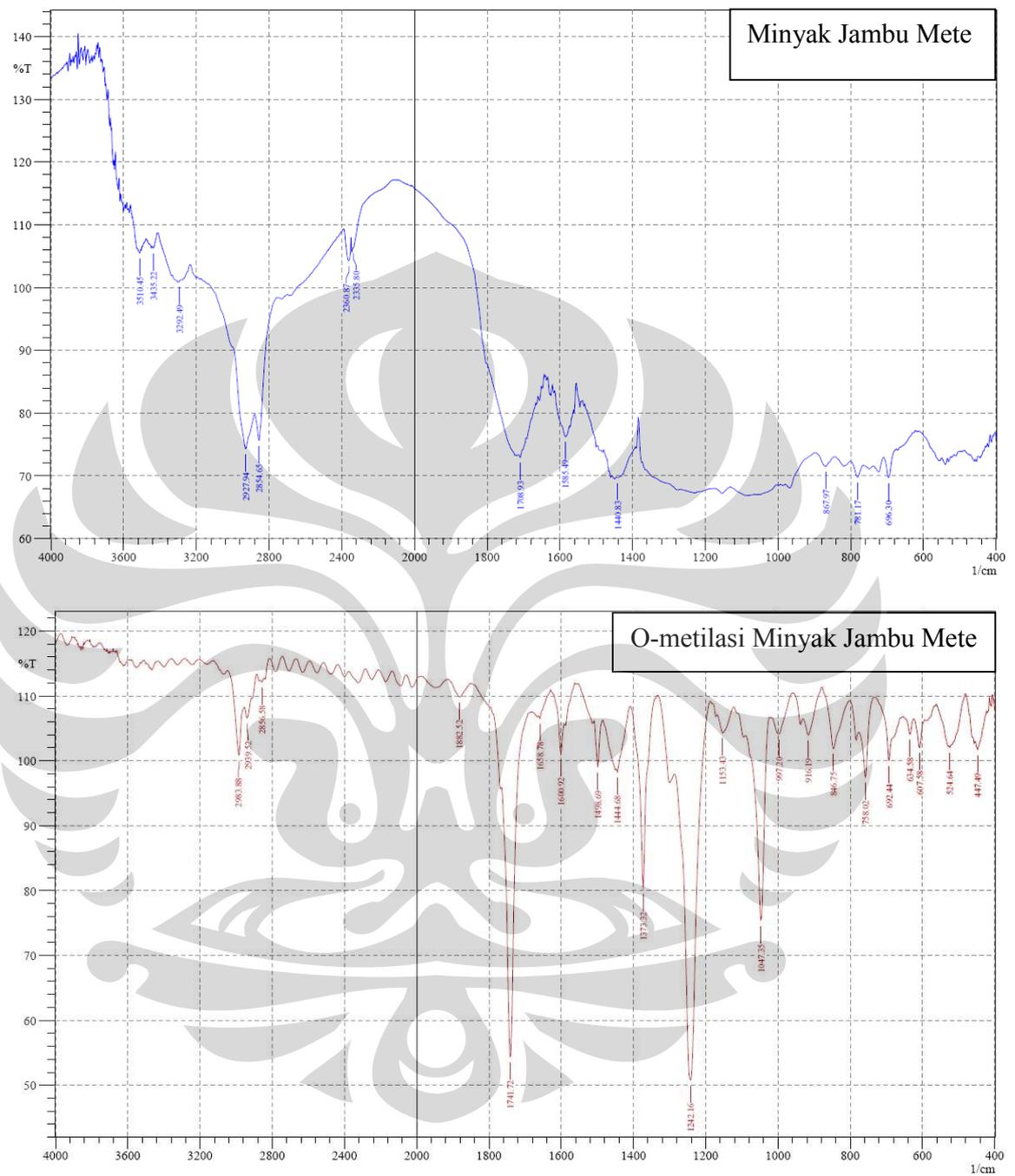
Dalam penelitian ini dilakukan reaksi O-metilasi dengan menggunakan minyak jambu mete sebagai sumber fenol dengan metanol menggunakan zeolit X sebagai katalis. Kondisi reaksi yang dilakukan adalah dengan menggunakan waktu optimum 10 jam, berat katalis sebesar 15% berat reaktan, dan juga zeolit X dengan rasio Si/Al=1,33. Suhu reaksi pun tetap diatur pada 155<sup>o</sup>C. setelah dilakukan reaksi, hasil reaksi diekstrak dengan menggunakan etil asetat dan heksana. Kemudian diambil fasa organiknya dan dianalisa dengan menggunakan FTIR.

FTIR dilakukan untuk minyak jambu mete standard dan untuk hasil reaksi O-metilasi dari minyak jambu mete. Terlihat pada hasil FTIR minyak jambu mete standard, puncak yang agak melebar pada daerah 3292 cm<sup>-1</sup>. Ini menunjukkan adanya gugus –OH. Terlihat juga adanya puncak pada 1708 cm<sup>-1</sup> yang menunjukkan gugus karboksilat dari asam anakardat. Setelah dilakukan reaksi O-metilasi terjadi perubahan daerah puncak. Puncak –OH yang melebar tidak lagi terlihat. Muncul puncak pada daerah 2869 cm<sup>-1</sup>, yang menunjukkan gugus –OCH<sub>3</sub>. Hal ini berarti terjadi reaksi O-metilasi dari minyak jambu mete. Selain terjadi O-metilasi juga terjadi reaksi esterifikasi dari asam anakardat yang terkandung dalam minyak jambu mete. Terlihat

dari hilangnya karakteristik karboksilat pada hasil FTIR. Yang muncul adalah puncak ester yang terbaca pada  $1741\text{ cm}^{-1}$ .

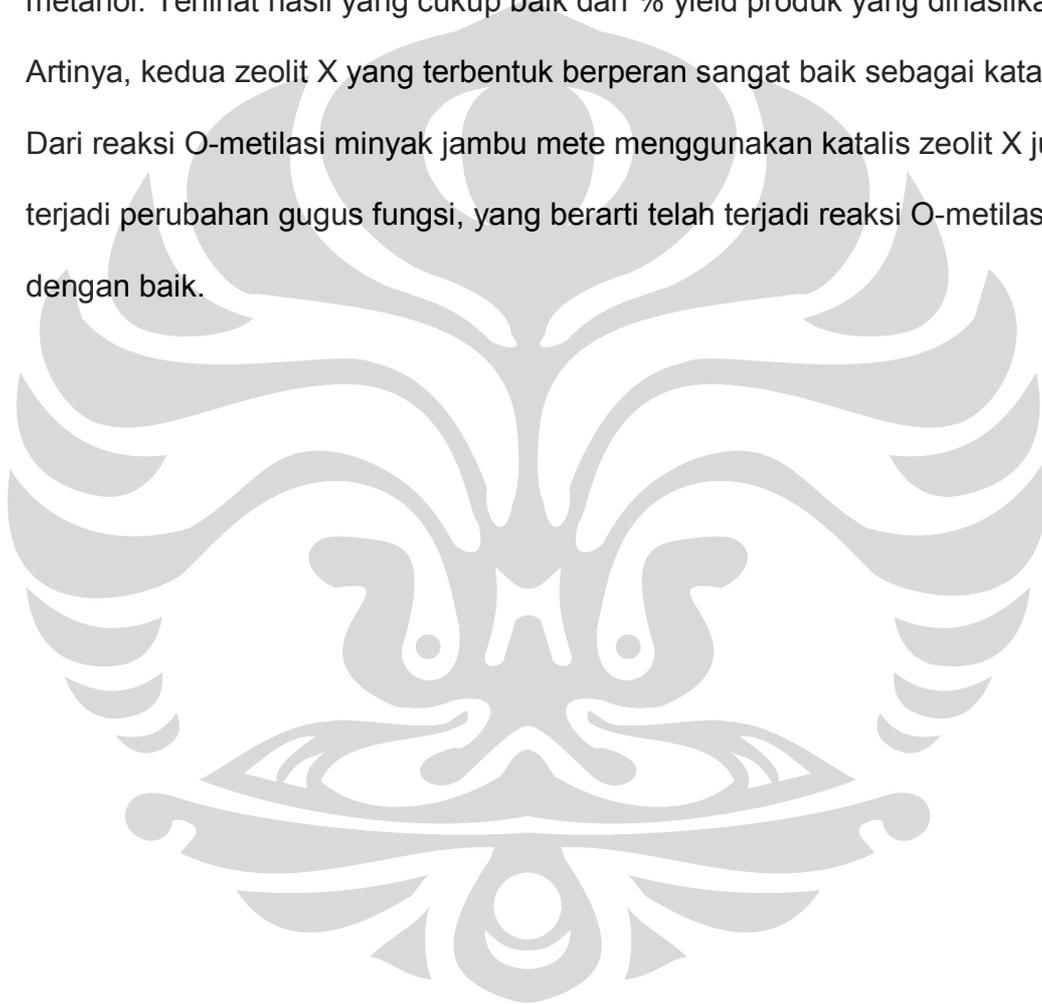
Tabel 4.8.  
Hasil FTIR Minyak Jambu Mete dan O-metilasi Minyak Jambu Mete

Minyak Jambu Mete	Hasil O-metilasi
$3292,49\text{ cm}^{-1}$ (gugus OH)	$2869,35\text{ cm}^{-1}$ (gugus $-\text{OCH}_3$ )
$2927,94\text{ cm}^{-1}$ dan $2854,65\text{ cm}^{-1}$ (alkil)	$2983,88\text{ cm}^{-1}$ dan $2939,52\text{ cm}^{-1}$ (alkil)
$1708,93\text{ cm}^{-1}$ (gugus karboksilat)	$1741,72\text{ cm}^{-1}$ (gugus ester)
$1440,83\text{ cm}^{-1}$ (cincin benzena)	$1444,68\text{ cm}^{-1}$ (cincin benzena)
	$1047,35\text{ cm}^{-1}$ (gugus eter)



Gambar 4.11.  
Hasil FTIR Minyak Jambu Mete dan O-metilasi Minyak Jambu Mete

Jadi, dapat diamati bahwa zeolit X dapat disintesis dari bahan dasar kaolin. Zeolit X yang terbentuk memiliki karakteristik yang berbeda, yakni rasio Si/Al dan kemungkinan strukturnya. Zeolit X tersebut kemudian diuji aktivitas dan selektifitas katalitiknya dalam reaksi O-metilasi fenol dengan metanol. Terlihat hasil yang cukup baik dari % yield produk yang dihasilkan. Artinya, kedua zeolit X yang terbentuk berperan sangat baik sebagai katalis. Dari reaksi O-metilasi minyak jambu mete menggunakan katalis zeolit X juga terjadi perubahan gugus fungsi, yang berarti telah terjadi reaksi O-metilasi dengan baik.



## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1. KESIMPULAN

1. Zeolit X dapat disintesis dengan menggunakan bahan dasar kaolin.
2. Kaolin yang digunakan mempunyai rasio Si/Al sebesar 1,58 dan setelah diaktivasi menjadi metakaolin rasio Si/Al-nya sebesar 1,49 serta komposisi gel yang digunakan sebesar 3,83 Na<sub>2</sub>O : 1,17 K<sub>2</sub>O : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 2,97 SiO<sub>2</sub> : 118 H<sub>2</sub>O.
3. Mekanisme reaksi O-metilasi fenol dengan metanol menjadi anisol merupakan reaksi Substitusi Nukleofilik Bimolekuler (S<sub>N</sub>2) dimana terbentuk ion fenoksi dan metoksi dalam intermedietnya. Penyerangan dilakukan oleh ion fenoksi terhadap gugus metil dari methanol. Ion fenoksi memiliki nukleofilisitas yang lebih besar disbanding dengan ion metoksi.
4. Dilakukan 2 variasi terhadap reaksi O-metilasi, yakni variasi waktu dan variasi berat katalis yang digunakan. Didapati hasil maksimum yakni waktu optimum 10 jam dan berat katalis yang optimum 15% berat reaktan dengan menggunakan zeolit X (Si/Al=1,33) dimana %konversi fenol = 85,4%; %yield anisol = 84,6%; dan %selektifitas = 99,1%.
5. Reaksi O-metilasi juga dilakukan terhadap minyak jambu mete dengan metanol. Analisis hasil menggunakan FTIR terdapat peak pada 2869 cm<sup>-1</sup> yang menunjukkan adanya gugus -OCH<sub>3</sub>.

## 5.2. SARAN

1. Perlu dilakukan analisis secara kuantitatif terhadap reaksi O-metilasi minyak jambu mete untuk dapat diamati %yield yang diperoleh.
2. Melakukan proses sintesis menggunakan Organic Structure Directing Agent untuk mensintesis zeolit X agar dapat diketahui kualifikasi yang lebih baik dari zeolit.
3. Melakukan penelitian lebih lanjut mengenai reaksi O-metilasi fenol dengan menggunakan sumber metil selain metanol.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Romero, Maria D., et al. 2004. O Methylation of Phenols in Liquid Phase Over Basic Zeolites. *Ind. Eng. Chem. Res.* 2004, 43, 8194-8199. American Chemical Society.
2. Boajian Shen, Ping Wang, et.al. 2009. Synthesis of Zeolite Beta from Kaolin and Its Catalytic Performance for FCC Naphta. *Energy Fuels*, 2009, 23 (1), 60-64. American Chemical Society.
3. Zi-hua Fu and Yoshio Ono .1993. Selective O-methylation of Phenol with Dimethyl Carbonate Over X-Zeolites. *Catalyst Letters*. 21 (1993), 43-47. American Chemical Society.
4. Ouk,Samedy, et.al. 2002. High performance Method for O-methylation of Phenol with Dimethyl Carbonate. *Applied Catalyst*, 2002, 227-233. Elsevier.
5. Ouk, Samedy,et.al. 2002. O-methylation of phenolic Compounds with Dimethyl Carbonate under Solid/Liquid Phase Transfer. *Tetrahedron Letters*, 2002, 2661-2663. Pergamon.
6. Lee, Su Chul,et.al. 1998. O-alkylation of Phenol Derivatives Over Basic Zeolites. *Catalysis Today*, 1998, 253-258. Elsevier.
7. Bregolato,M, et.al. 2006. Methylation of Phenol Over High-Silica Beta Zeolite Acidity and crystal Size on Catalyst Behaviour. *Journal of Catalyst*, 2006, 285-300. Elsevier

8. Riyanto, Ari Fajar. 2007. Studi reaksi Katalitik O-metilasi Fenol dan Metanol Menjadi Anisol dengan Menggunakan Katalis Zeolit X dalam Fasa Cair. Depok: Departemen Kimia UI
9. Atkins, P.W. 1997. Kimia Fisik . Jakarta: Erlangga
10. B. Coleman, Patricia. 1993. Infrared Practical Sampling and Technique. USA: CRC Publisher
11. Jenkins, Ron. 1998. X Ray Fluorescence Spectrometry. USA: Wiley Interscience
12. Gates, C.N. 1991. Chemistry and Catalytic Process. New York: McGraw Hill
13. Breck, Donald W. 1994. Zeolite Molecular Sieves Structure, Chemistry, and Use.
14. McNair, H.M, et.al. 1988. Dasar Kromatografi Gas. Bandung: ITB
15. <http://research.memphis.edu/msr/photos/spectrofac2.jpg>X-ray fluorescence, 10 October 2009, pukul 16.00.
16. [http://en.wikipedia.org/wiki/X-ray\\_Scattering](http://en.wikipedia.org/wiki/X-ray_Scattering), 12 October 2009, pukul 18.00
17. <http://paknewulan.wordpress.com/2008/12/31/pemanfaatan-limbah-jambu-mete>, 12 October 2009, pukul 13.00.

18. [http://www.fastcomtec.com/fwww/xray/xrf\\_files/xrf\\_2.gif](http://www.fastcomtec.com/fwww/xray/xrf_files/xrf_2.gif), 1 November 2009, pukul 12.00
19. [http://en.wikipedia.org/wiki/Fourier\\_transform\\_infrared\\_spectroscopy#Fourier\\_transform\\_infrared\\_spectroscopy](http://en.wikipedia.org/wiki/Fourier_transform_infrared_spectroscopy#Fourier_transform_infrared_spectroscopy), 1 November 2009, pukul 09.00.
20. [http://www.sydneyconstructionmaterials.com/images/kaolin\\_400x264.jpg](http://www.sydneyconstructionmaterials.com/images/kaolin_400x264.jpg), 1 November 2009, pukul 11.00.
21. <http://en.wikipedia.org/wiki/Catalysis>, 8 November 2009, pukul 08.00
22. [http://en.wikipedia.org/wiki/Anacardic\\_acid](http://en.wikipedia.org/wiki/Anacardic_acid), 9 November 2009, pukul 13.00
23. <http://en.wikipedia.org/wiki/adsorption>, 10 November 2009.pukul 15.00.
24. <http://research.memphis.edu/msr/photos/spectrofac2.jpg>X-ray fluorescence. 16 November 2009, pukul 12:00
25. [http://www.chem-is-try.org/artikel\\_kimia/kimia\\_anorganik/fakta-tentang-zeolit/](http://www.chem-is-try.org/artikel_kimia/kimia_anorganik/fakta-tentang-zeolit/), 20 Agustus 2009, pukul 10:00
26. [www.grdc.esdm.go.id/.../75-potensi-zeolit-di-daerah-sangkaropi-mendila-tana-toraja-sulawesi-selatan-.html](http://www.grdc.esdm.go.id/.../75-potensi-zeolit-di-daerah-sangkaropi-mendila-tana-toraja-sulawesi-selatan-.html), 20 Agustus 2009, pukul 10:30
27. <http://id.wikipedia.org/wiki/Zeolit>, 20 Agustus 2009, pukul 10:45

28. [www.chem-is-try.org/.../zeolit\\_sebagai\\_mineral\\_serba\\_guna/](http://www.chem-is-try.org/.../zeolit_sebagai_mineral_serba_guna/), 20 Agustus 2009, pukul 11:00
29. [warmada.staff.ugm.ac.id/Articles/rodhie-zeolit](http://warmada.staff.ugm.ac.id/Articles/rodhie-zeolit). 20 Agustus 2009, pukul 15:00
30. [www.scribd.com/doc/9209819/zeolit](http://www.scribd.com/doc/9209819/zeolit), 20 Agustus 2009, pukul 15:30
31. [lartpc-docdb.fnal.gov/0000/000084/001/zeolite\\_molecular\\_sieve](http://lartpc-docdb.fnal.gov/0000/000084/001/zeolite_molecular_sieve), 21 Agustus 2009, pukul 08:30
32. [www.zeoinc.com/zeolite\\_structure.html](http://www.zeoinc.com/zeolite_structure.html), 21 Agustus 2009, pukul 08:45
33. [www.ch.ic.ac.uk/vchemlib/course/zeolite/structure.html](http://www.ch.ic.ac.uk/vchemlib/course/zeolite/structure.html), 21 Agustus 2009, pukul 09:30
34. [www.ima-eu.org/eka.html](http://www.ima-eu.org/eka.html), 13 September 2009, pukul 20:30
35. [en.wikipedia.org/Kaolin](http://en.wikipedia.org/Kaolin), 15 September 2009, pukul 18:00
36. [skele.ui.ac.id/Zeolit?Hidrotermal Synthesis](http://skele.ui.ac.id/Zeolit?Hidrotermal%20Synthesis), 28 Agustus 2009, pukul 14:30
37. [id.wikipedia.org/Katalis](http://id.wikipedia.org/Katalis), 1 September 2009, pukul 15:30
38. [http://en.wikipedia.org/wiki/X-ray\\_fluorescence](http://en.wikipedia.org/wiki/X-ray_fluorescence), 12 September 2009, pukul 12:00
39. Indriyati. 2005. Sintesis Zeolit X dari Kaolin dan Aplikasinya Sebagai Penapis Molekul Sikloalkana. Karya Utama Sarjana Kimia. Universitas Indonesia.

40. Kurniawan, Iwan. 2006. Sintesis Zeolit X dari Kaolin: Modifikasi Kepolaran Struktur dengan Memvariasikan Si:Al pada Kerangka Zeolit X. Karya Utama Sarjana Kimia. Universitas Indonesia.
41. Marbun, Dessy Sitri. 2006. Studi Pendahuluan Sintesis Zeolit Y dari Kaolin dan Penggunaannya Sebagai Zeolite Modified Electrode (ZME). Karya Utama Sarjana Kimia. Universitas Indonesia.
42. Basaldella, E.I. and J.C. Tara. 1995. Synthesis of LSX Zeolite in Na/K System: Influence of Na/K Ratio. *Journal Zeolite* 7:63-66. New York, USA.
43. Akolekar, Deepak, Alan Chaffe, and Russel F. Howe. 1997. The Transformation of Kaolin to Low-Silica X Zeolite. *Journal Zeolites* 19: 359-365.

## Lampiran 1

### Perhitungan Kuantitatif GC

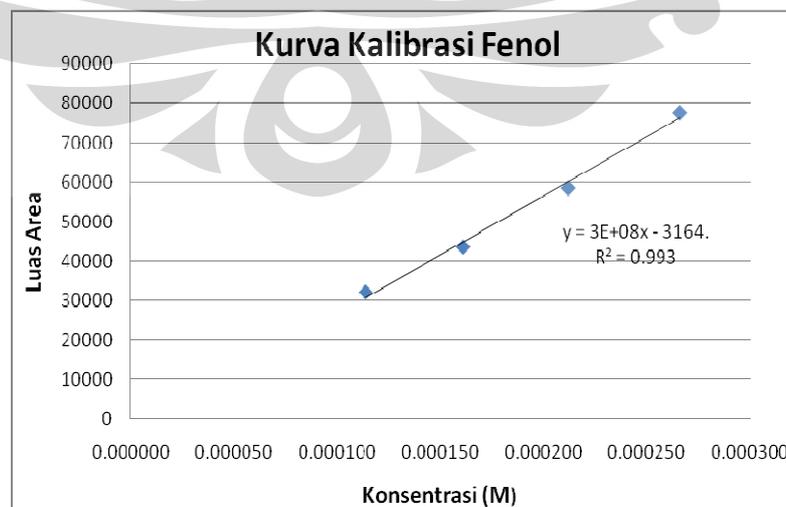
$$\% \text{ Konversi fenol} = \frac{\text{Mol fenol terkonversi}}{\text{Mol feed fenol}} \times 100\%$$

$$\% \text{ Yield anisol} = \frac{\text{Mol anisol yang terbentuk}}{\text{Mol feed fenol}} \times 100\%$$

$$\% \text{ Selektifitas anisol} = \frac{\text{Mol anisol yang terbentuk}}{\text{Mol fenol terkonversi}} \times 100\%$$

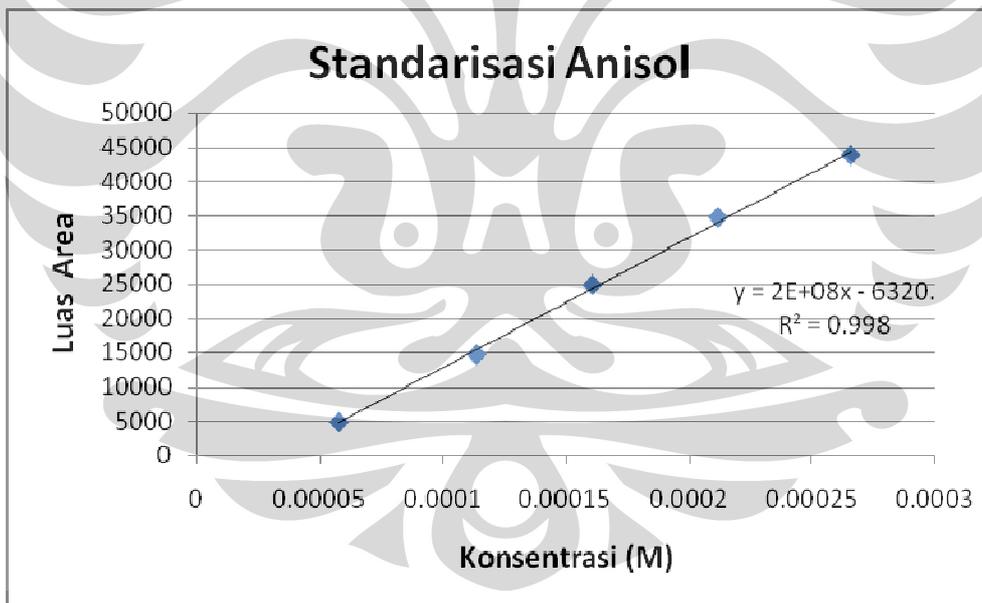
#### 1. Standardisasi fenol

Konsentrasi (M)	Luas Area
0,000114	32271
0,000161	43639
0,000212	58604
0,000266	77603



## 2. Standardisasi Anisol

Konsentrasi (M)	Luas Area
0,000058	4817
0,000114	14683
0,000161	24851
0,000212	34714
0,000266	43793



3. Hasil reaksi pada molar rasio (fenol : metanol) 1:20 dan suhu reaksi 155<sup>0</sup>C dengan menggunakan zeolit X dengan rasio Si/Al =1.33

Waktu (jam)	Luas Area Anisol	Luas Area Fenol	Konsentrasi Anisol	Konsentrasi Fenol Terkonversi	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektifitas Anisol
6 jam	27090	26296	1,670E-04	1,678E-04	63,1	62,8	99,5
10 jam	36665	11689	2,149E-04	2,165E-04	81,4	80,8	99,3
14 jam	37464	9853	2,189E-04	2,226E-04	83,7	82,3	98,3
18 jam	35380	7276	2,085E-04	2,312E-04	86,9	78,4	90,2
24 jam	32398	6974	1,936E-04	2,322E-04	87,3	72,8	83,4

4. Hasil reaksi pada molar rasio (fenol : metanol) 1:20 dan suhu reaksi 155<sup>0</sup>C dengan menggunakan zeolit X dengan rasio Si/Al = 1

Waktu (jam)	Luas Area Anisol	Luas Area Fenol	Konsentrasi Anisol	Konsentrasi Fenol Terkonversi	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektifitas Anisol
6 jam	25068	29145	1,569E-04	1,583E-04	59,5	59,0	99,1
10 jam	35283	13518	2,080E-04	2,104E-04	79,1	78,2	98,9
14 jam	36500	11263	2,141E-04	2,179E-04	81,9	80,5	98,3
18 jam	32099	9916	1,921E-04	2,224E-04	83,6	72,2	86,4
24 jam	29896	8473	1,811E-04	2,272E-04	85,4	68,1	79,7

5. Hasil reaksi pada molar rasio (fenol : metanol) 1:20 dengan suhu reaksi pada 155<sup>0</sup>C, waktu reaksi 10 jam, dan menggunakan katalis zeolit X dengan rasio Si/Al = 1,33

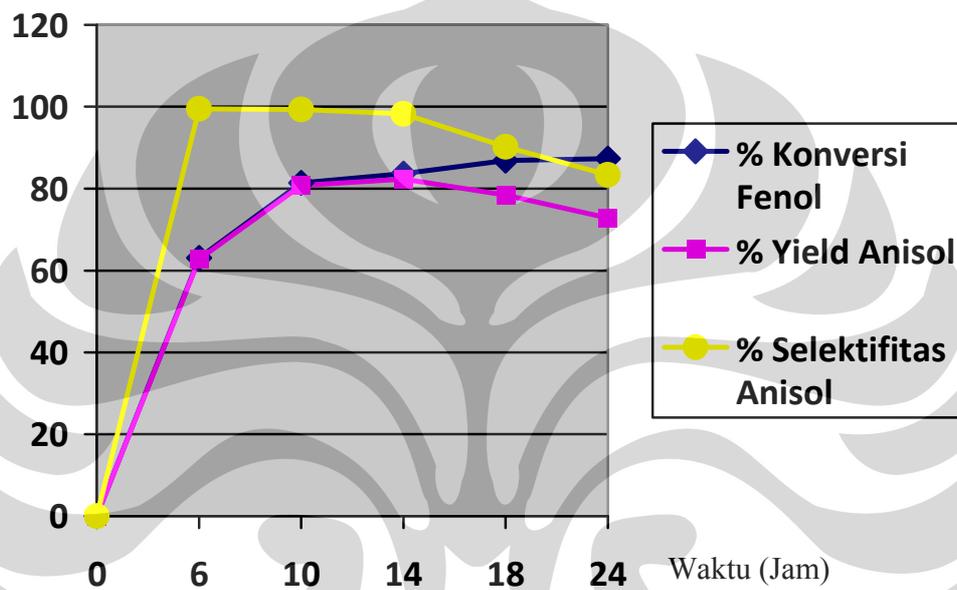
Berat katalis (%berat reaktan)	Luas Area Anisol	Luas Area Fenol	Konsentrasi Anisol	Konsentrasi Fenol Terkonversi	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektivitas Anisol
5%	28359	24136	1,734E-04	1,750E-04	65,8	65,2	99,1
10%	36665	11689	2,149E-04	2,165E-04	81,4	80,8	99,3
15%	38680	8473	2,250E-04	2,272E-04	85,4	84,6	99,1
25%	37035	9314	2,168E-04	2,244E-04	84,3	81,5	96,7

6. Hasil reaksi pada molar rasio (fenol : metanol) 1:20 dengan suhu reaksi pada 155<sup>0</sup>C, waktu reaksi 10 jam, dan menggunakan katalis zeolit X dengan rasio Si/Al = 1

Berat katalis (%berat reaktan)	Luas Area Anisol	Luas Area Fenol	Konsentrasi Anisol	Konsentrasi Fenol Terkonversi	% Konversi Fenol	% Yield Anisol	% Selektivitas Anisol
5%	35413	33692	1,668E-04	1,705E-04	64,1	62,7	97,8
10%	35283	13518	2,080E-04	2,104E-04	79,1	78,2	98,9
15%	36980	10726	2,165E-04	2,197E-04	82,6	81,4	98,5
25%	35437	12749	2,088E-04	2,163E-04	81,3	78,5	96,6

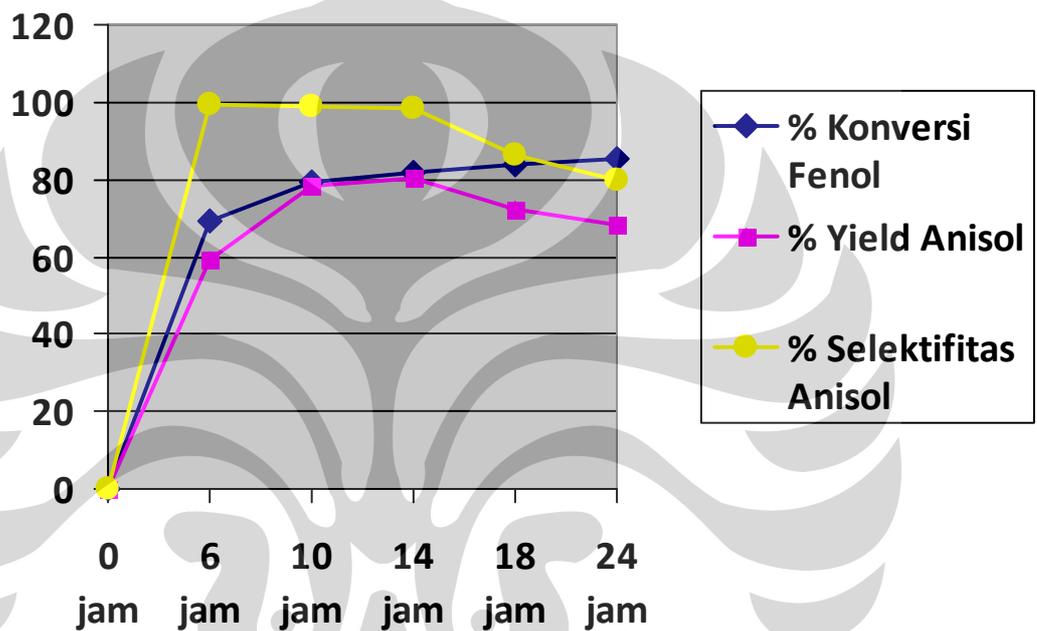
## Lampiran 2

Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : methanol) berdasarkan variasi waktu dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1,33)



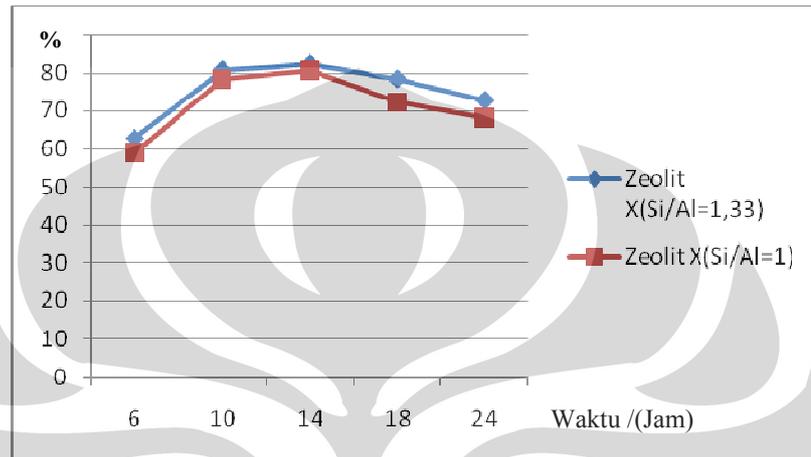
## Lampiran 3

Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : methanol) berdasarkan variasi waktu dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1)



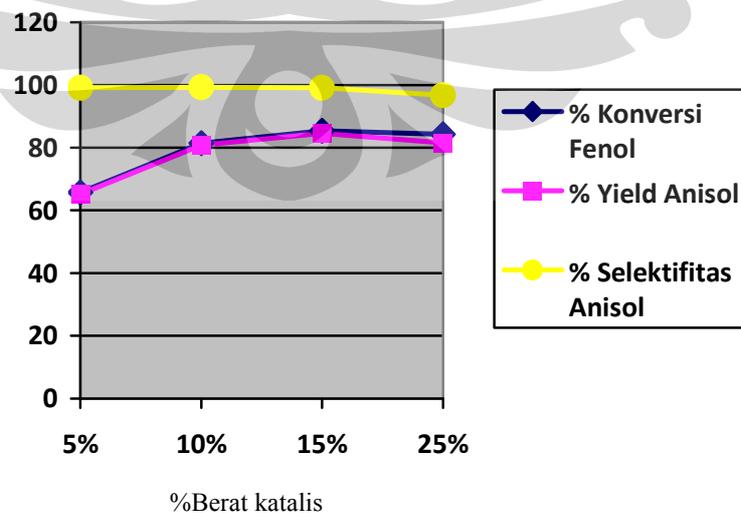
## Lampiran 4

Grafik % yield anisol yang terbentuk terhadap waktu pada suhu  $155^{\circ}\text{C}$  dan molar rasio fenol : metanol 1:20



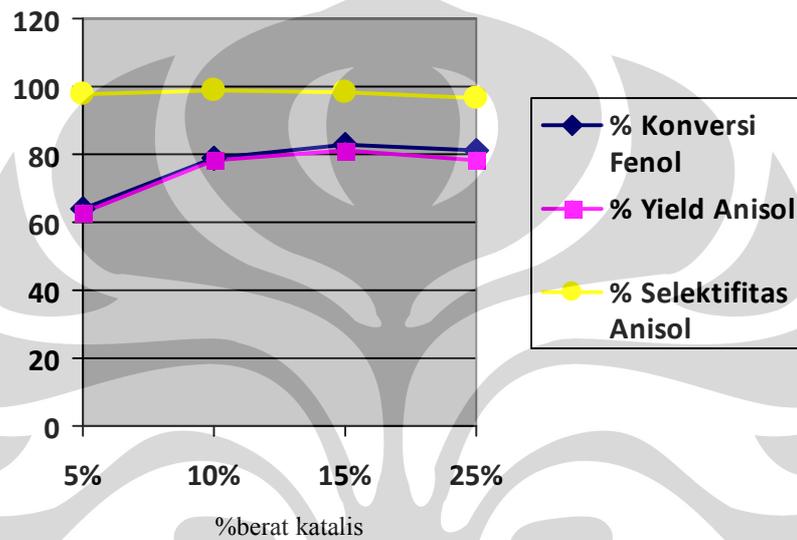
## Lampiran 5

Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi berat katalis dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1,33)



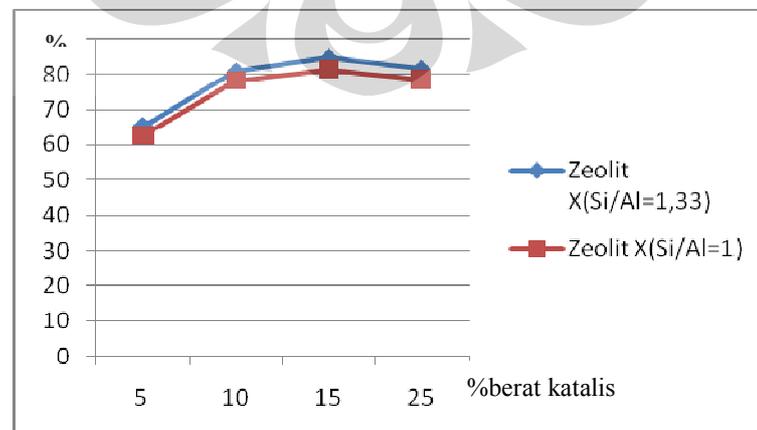
## Lampiran 6

Kurva hasil reaksi O-metilasi fenol dengan metanol dengan rasio molar 1:20 (fenol : metanol) berdasarkan variasi berat katalis dengan menggunakan zeolit X (Si/Al = 1)

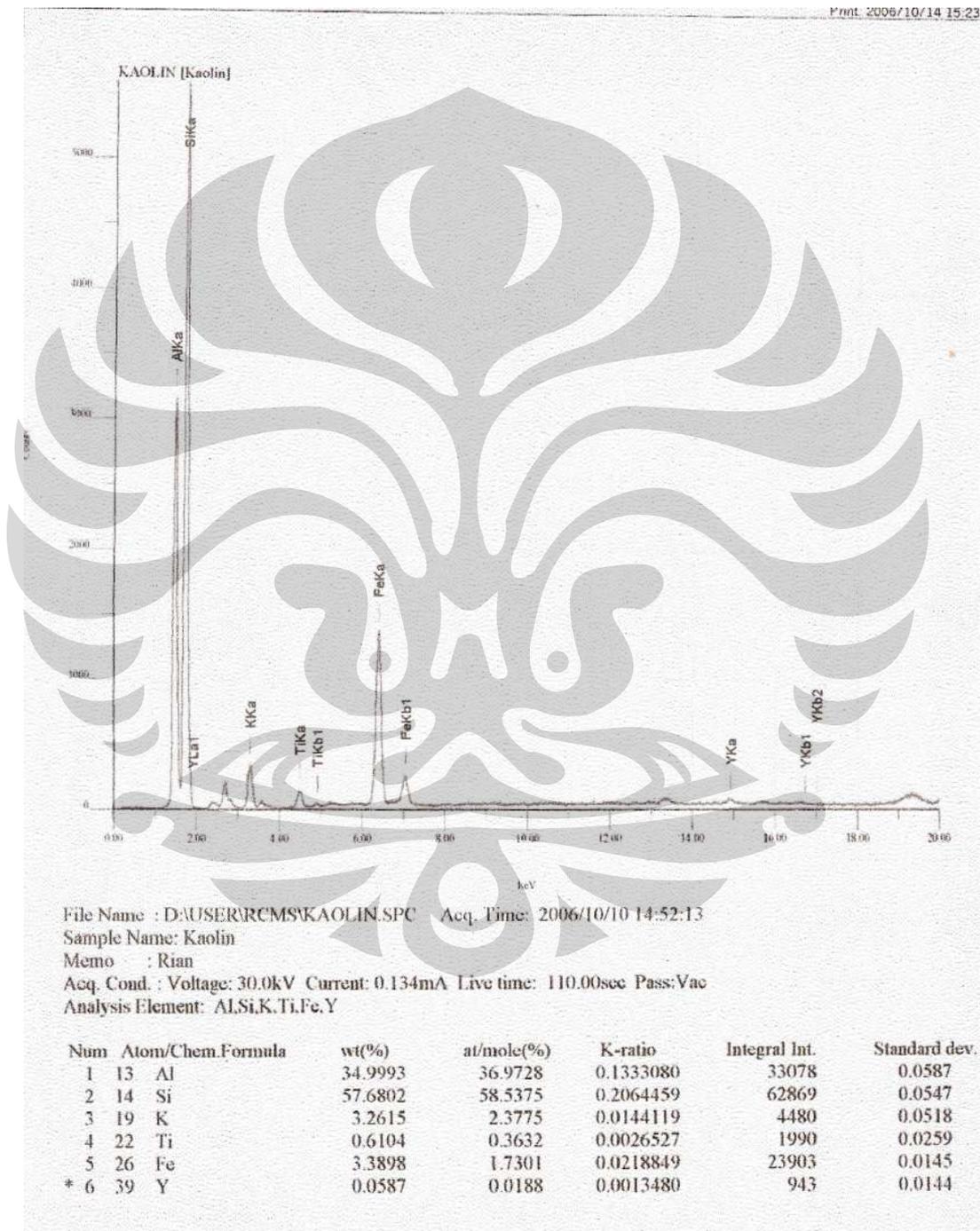


## Lampiran 7

Grafik % yield anisol yang terbentuk terhadap berat katalis pada suhu 155°C dan molar rasio fenol : metanol 1:20

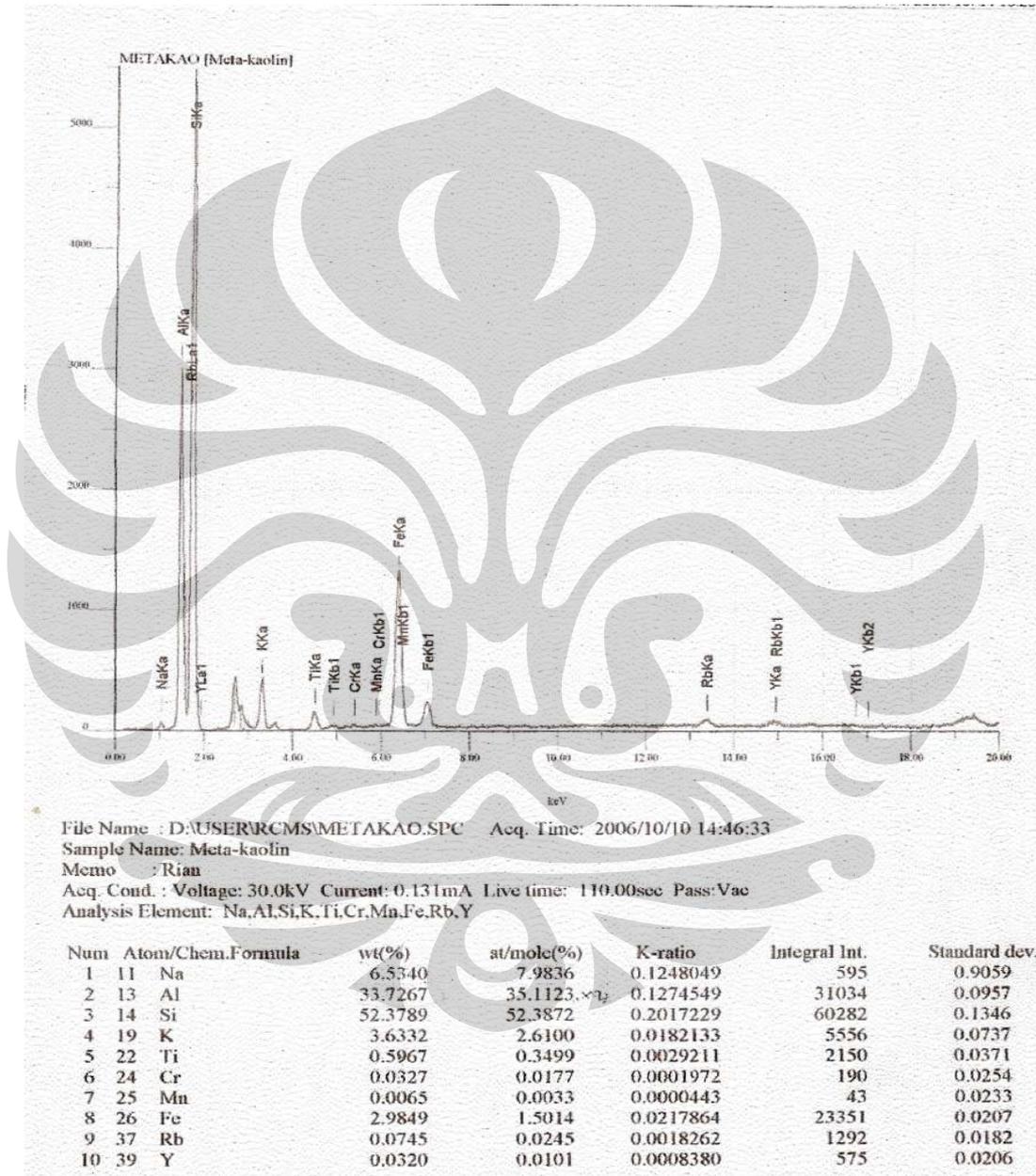


Lampiran 8<sup>8</sup>  
Difraktogram XRF Kaolin



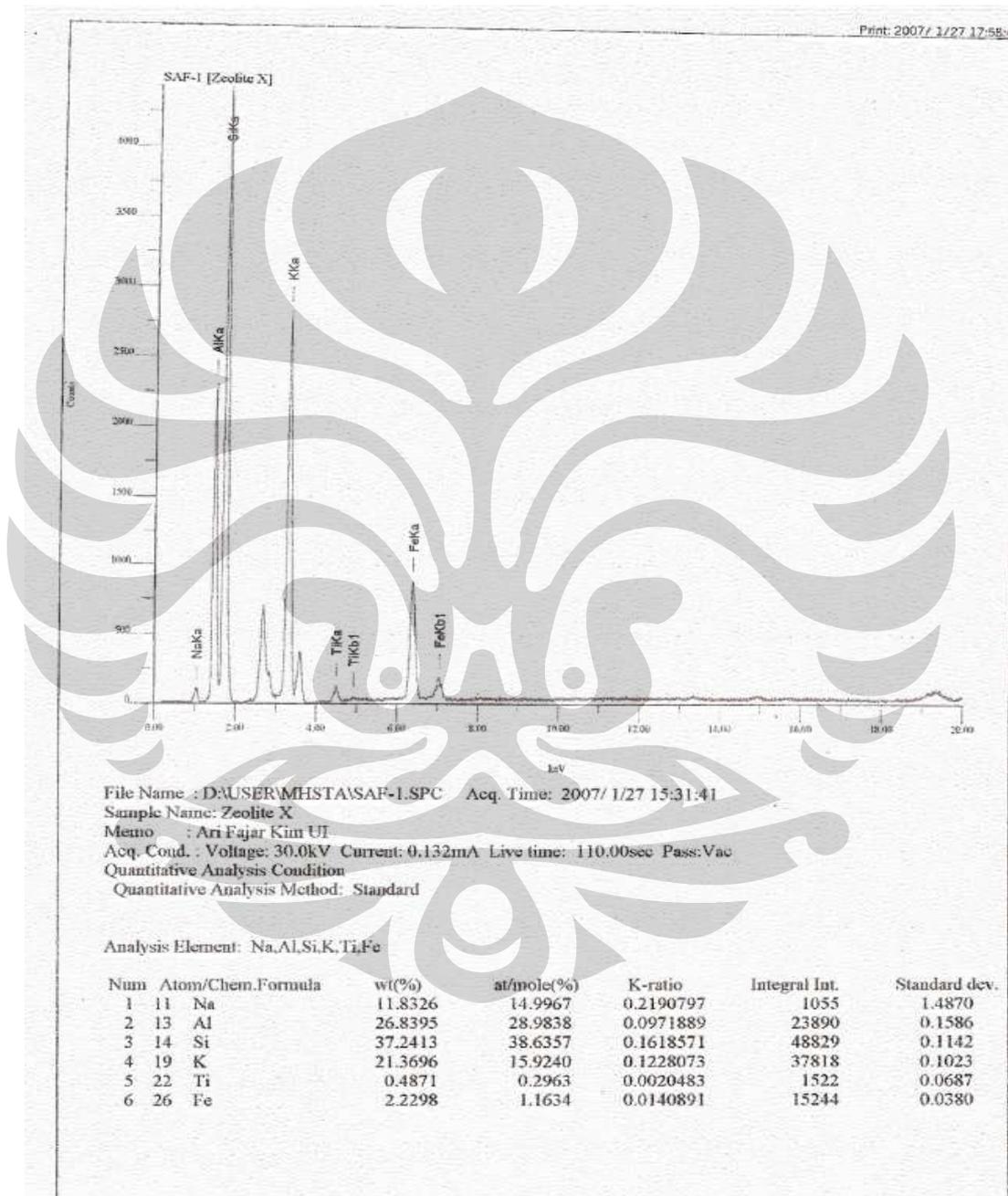
Lampiran 9<sup>8</sup>

## Difraktogram XRF Metakaolin



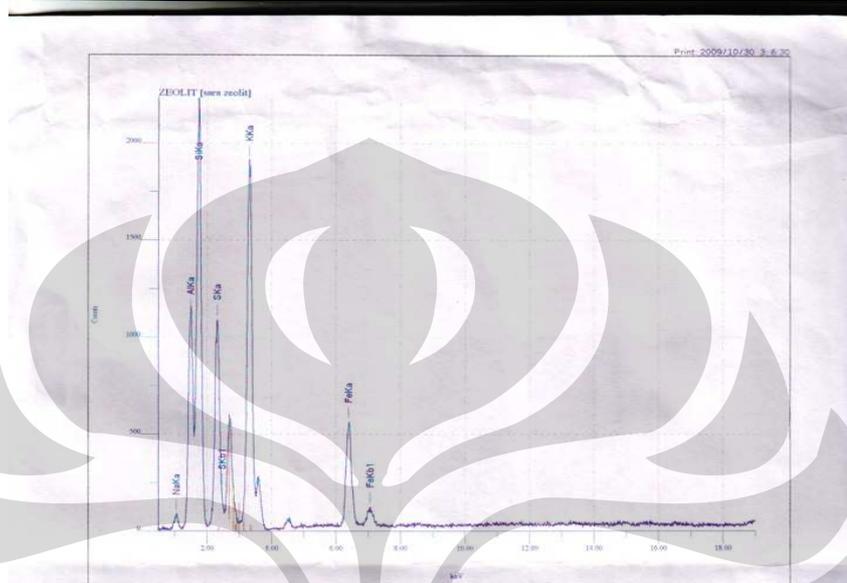
Lampiran 10<sup>8</sup>

## Difraktogram XRF Zeolit X (Si/Al=1,33)



## Lampiran 11

## Difraktogram XRF Zeolit X (Si/Al=1)



## Lampiran 12

## Data BET Zeolit X (Si/Al=1,33)

Quantachrome NovaWin2 - Data Acquisition and  
for NOVA instruments  
©1994-2003, Quantachrome Instrument  
version 2.1



Optimizing particle performance

\*\*\* This report was generated by an unaudited system \*\*\*

Analysis		Report	
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 2009/10/07	Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 1/8/2003
Sample ID: X-l- u 1	Filename: C:\QCdata\physisorb\T 21-1.qps		
Sample Desc: powder	Comment: 9 mm Long Standard sample cell with filler rod.		
Sample weight: 0.2 g	Sample Volume: 0.0 cc		
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C	Analysis gas: Nitrogen	
Analysis Time: 171.2 min	End of run: 2009/10/07 13:55:12	Instrument: Nova Station A	
Bath Temp: 273.0 K	Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 90/90 sec (ads/des)	

### Multi-Point BET

#### Data Reduction Parameters

Thermal Transpiration: on	Eff. mol. diameter (D): 3.5400 $\mu$	Eff. cell stem diam. (d): 7.0000 mm
<b>Adsorbate</b> Nitrogen	Temperature 77.350 K	
Molecular Wt.: 28.013 $\frac{g}{mol}$	Cross Section: 16.200 $\text{Å}^2/mol$	Liquid Density: 0.808 $\frac{g}{cc}$

### Multi-Point BET

Relative Pressure [P/Po]	Volume@STP1 / [W((Po/P) - 1)] [cc/g]	Relative Pressure [P/Po]	Volume@STP1 / [W((Po/P) - 1)] [cc/g]
1.29001e-01	45.1688	2.6235e+00	5.2790e+00
1.54526e-01	45.1975	3.2355e+00	6.0529e+00
1.79749e-01	45.2152	3.8778e+00	6.8770e+00

#### BET summary

Slope = 28.112  
Intercept = -1.097e+00  
Correlation coefficient, r = 0.998814  
C constant = -24.6  
Surface Area = 128.91 m<sup>2</sup>/g

Quantachrome NovaWin2 - Data Acquisition and  
for NOVA instruments  
©1994-2003, Quantachrome Instrument  
version 2.1



Optimizing particle performance

\*\*\* This report was generated by an unaudited system \*\*\*

<b>Analysis</b>	<b>Report</b>
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 2009/10/07
Sample ID: X-I-u 1	Filename: C:\QCdata\Physisorb\T 21-1.qps
Sample Desc: powder	Comment: 9 mm Long Standard sample cell with filler rod.
Sample weight: 0.2 g	Sample Volume: 0.0 cc
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C
Analysis Time: 171.2 min	Analysis gas: Nitrogen
Bath Temp: 273.0 K	End of run: 2009/10/07 13:55:12 Instrument: Nova Station A
	Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des) Equil time: 90/90 sec (ads/des)

**Total Pore Volume**

**Data Reduction Parameters**

Thermal Transpiration: on	Eff. mol. diameter (D): 3.5400 $\mu$ m	Eff. cell stem diam. (d): 7.0000 mm
Adsorbate	Nitrogen	Temperature 77.350 K
Molecular Wt.: 28.013 g/mol	Cross Section: 16.200 $\text{\AA}^2$ /mol	Liquid Density: 0.808 g/cc

**Total Pore Volume summary**  
**Total Pore Volume**

Total pore volume = 7.831e-02 cc/g for  
pores smaller than 1993.3  $\text{\AA}$  (Diameter)  
at P/Po = 0.99029

Quantachrome NovaWin2 - Data Acquisition and  
for NOVA instruments  
©1994-2003, Quantachrome Instrument  
version 2.1



Optimizing particle performance

\*\*\* This report was generated by an unaudited system \*\*\*

<b>Analysis</b>	<b>Report</b>
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 2009/10/07
Sample ID: X-I-u 1	Filename: C:\QCdata\Physisorb\T 21-1.qps
Sample Desc: powder	Comment: 9 mm Long Standard sample cell with filler rod.
Sample weight: 0.2 g	Sample Volume: 0.0 cc
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C
Analysis Time: 171.2 min	Analysis gas: Nitrogen
Bath Temp: 273.0 K	End of run: 2009/10/07 13:55:12 Instrument: Nova Station A
	Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des) Equil time: 90/90 sec (ads/des)

**Average Pore Size**

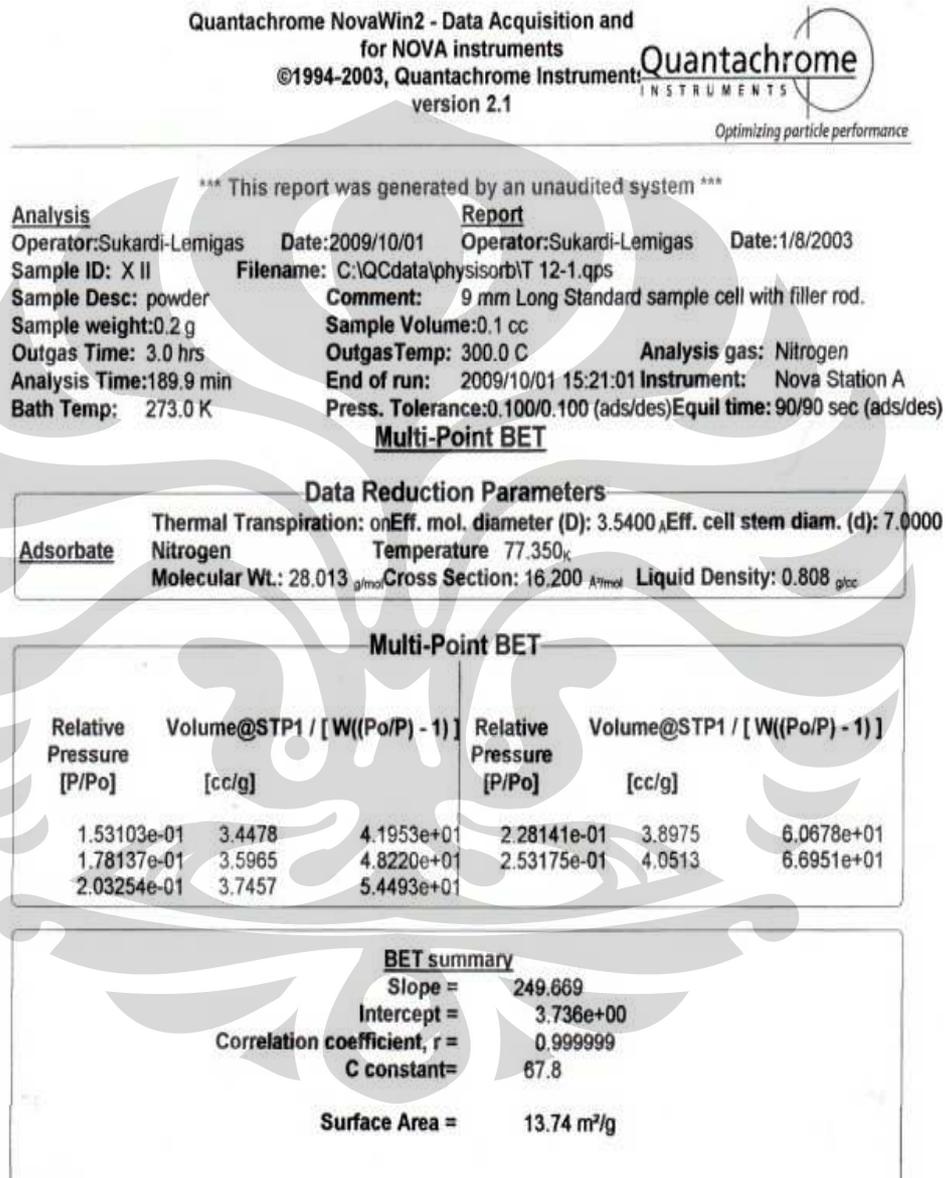
**Data Reduction Parameters**

Thermal Transpiration: on	Eff. mol. diameter (D): 3.5400 $\mu$ m	Eff. cell stem diam. (d): 7.0000 mm
Adsorbate	Nitrogen	Temperature 77.350 K
Molecular Wt.: 28.013 g/mol	Cross Section: 16.200 $\text{\AA}^2$ /mol	Liquid Density: 0.808 g/cc

**Average Pore Size summary**

Average pore Diameter = 2.42995e+01  $\text{\AA}$

Lampiran 13  
Data BET Zeolit X (Si/Al=1)



Quantachrome NovaWin2 - Data Acquisition and  
for NOVA instruments  
©1994-2003, Quantachrome Instrument  
version 2.1



Optimizing particle performance

\*\*\* This report was generated by an unaudited system \*\*\*

<b>Analysis</b>	<b>Report</b>
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 2009/10/01
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 1/8/2003
Sample ID: X II	Filename: C:\QCdata\physisorb\T 12-1.qps
Sample Desc: powder	Comment: 9 mm Long Standard sample cell with filler rod.
Sample weight: 0.2 g	Sample Volume: 0.1 cc
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C
Analysis Time: 189.9 min	Analysis gas: Nitrogen
Bath Temp: 273.0 K	End of run: 2009/10/01 15:21:01
	Instrument: Nova Station A
	Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)
	Equil time: 90/90 sec (ads/des)

**Total Pore Volume**

**Data Reduction Parameters**

<b>Adsorbate</b>	Thermal Transpiration: on	Eff. mol. diameter (D): 3.5400	Eff. cell stem diam. (d): 7.0000 mm
Nitrogen	Temperature	77.350 K	
Molecular Wt.: 28.013 g/mol	Cross Section:	16.200 Å <sup>2</sup> /mol	Liquid Density: 0.808 g/cc

**Total Pore Volume summary**  
**Total Pore Volume**

Total pore volume = 4.463e-02 cc/g for  
pores smaller than 2039.9 Å (Diameter)  
at P/Po = 0.99051

Quantachrome NovaWin2 - Data Acquisition and  
for NOVA instruments  
©1994-2003, Quantachrome Instrument  
version 2.1



Optimizing particle performance

\*\*\* This report was generated by an unaudited system \*\*\*

<b>Analysis</b>	<b>Report</b>
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 2009/10/01
Operator: Sukardi-Lemigas	Date: 1/8/2003
Sample ID: X II	Filename: C:\QCdata\physisorb\T 12-1.qps
Sample Desc: powder	Comment: 9 mm Long Standard sample cell with filler rod.
Sample weight: 0.2 g	Sample Volume: 0.1 cc
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C
Analysis Time: 189.9 min	Analysis gas: Nitrogen
Bath Temp: 273.0 K	End of run: 2009/10/01 15:21:01
	Instrument: Nova Station A
	Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)
	Equil time: 90/90 sec (ads/des)

**Average Pore Size**

**Data Reduction Parameters**

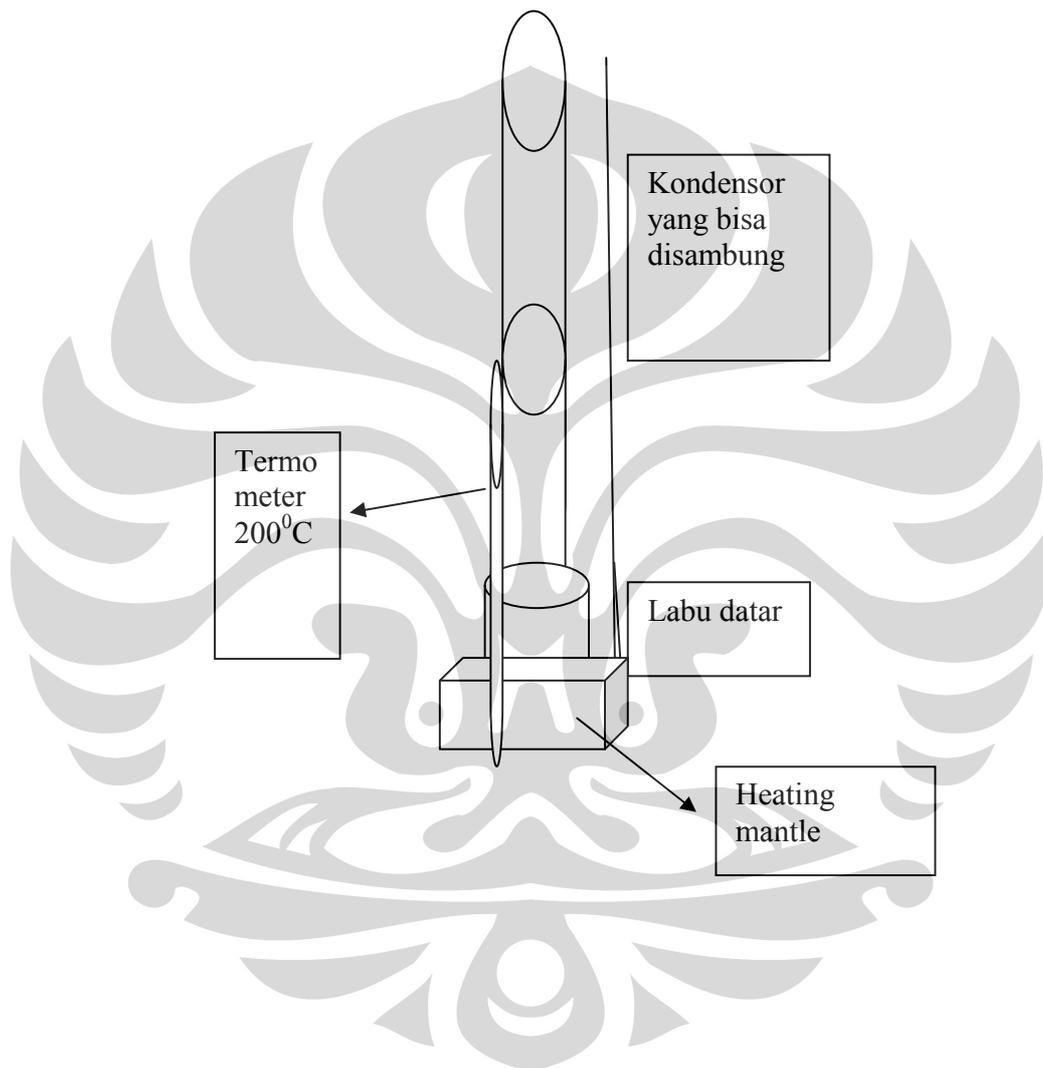
<b>Adsorbate</b>	Thermal Transpiration: on	Eff. mol. diameter (D): 3.5400	Eff. cell stem diam. (d): 7.0000 mm
Nitrogen	Temperature	77.350 K	
Molecular Wt.: 28.013 g/mol	Cross Section:	16.200 Å <sup>2</sup> /mol	Liquid Density: 0.808 g/cc

**Average Pore Size summary**

Average pore Diameter = 1.29895e+02 Å

## Lampiran 14

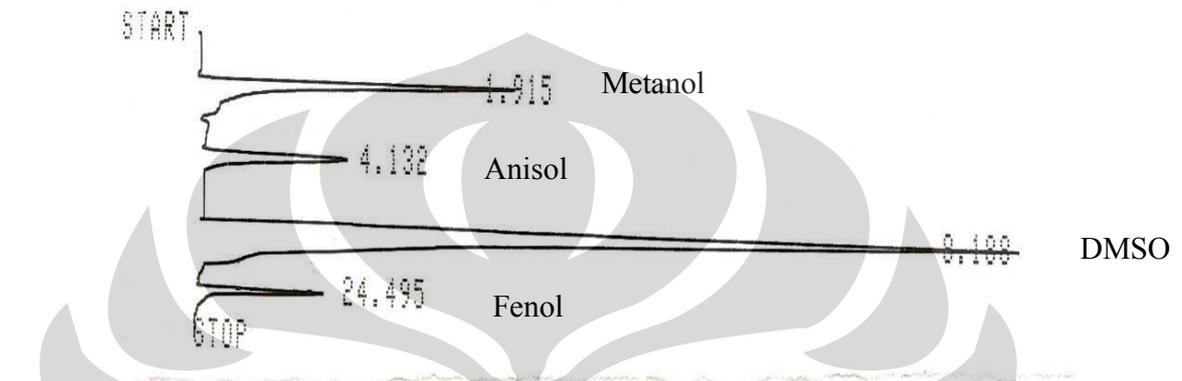
## Mikroreaktor Uji Katalitik Zeolit X



## Lampiran 15

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 6 jam Menggunakan Zeolit X

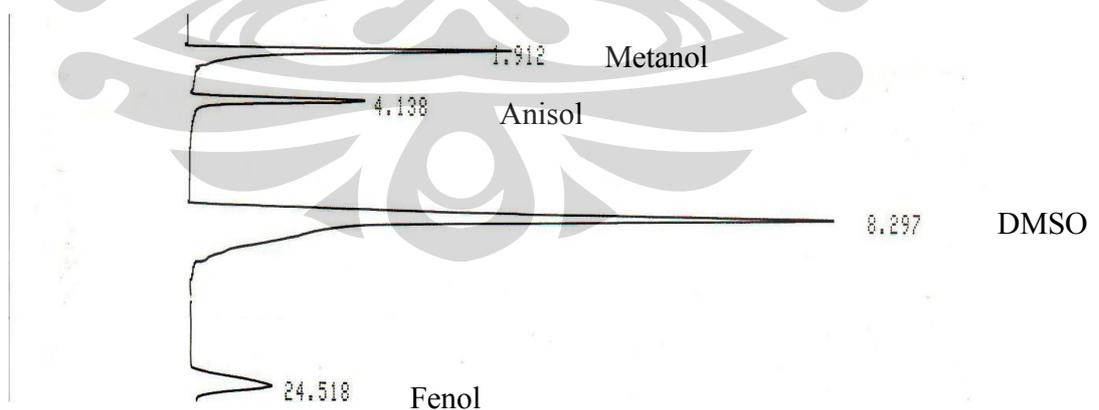
(Si/Al=1,33)



## Lampiran 16

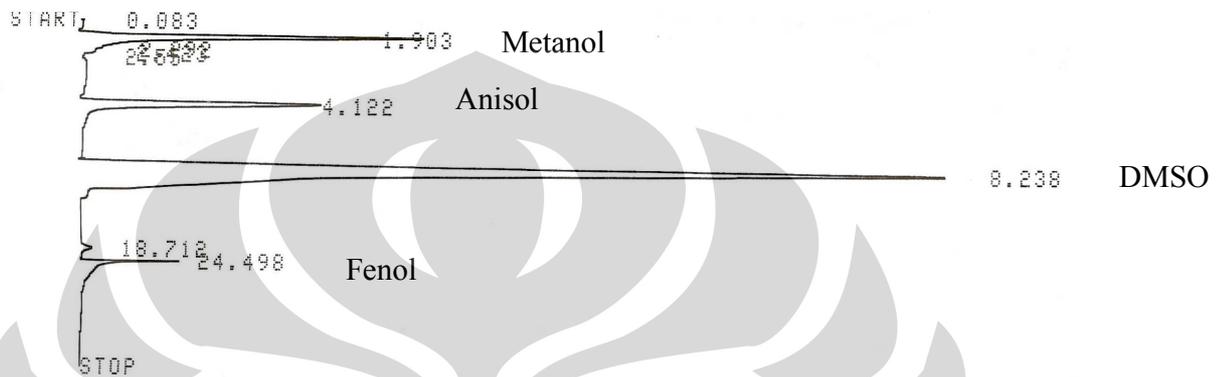
Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 10 jam Menggunakan Zeolit X

(Si/Al=1,33)



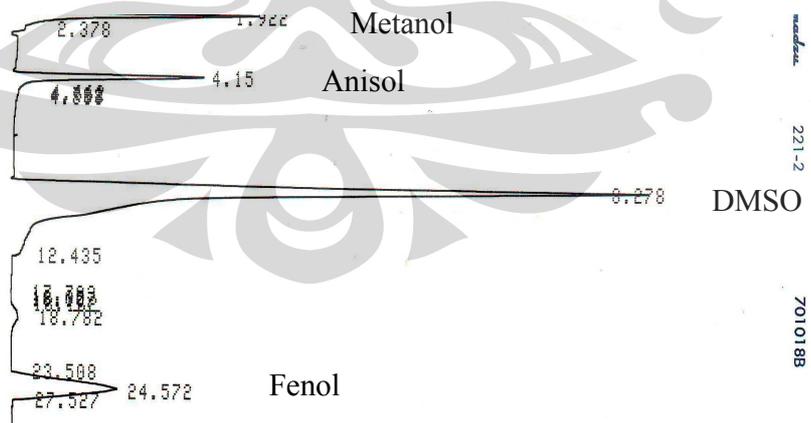
## Lampiran 17

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 14 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1,33)



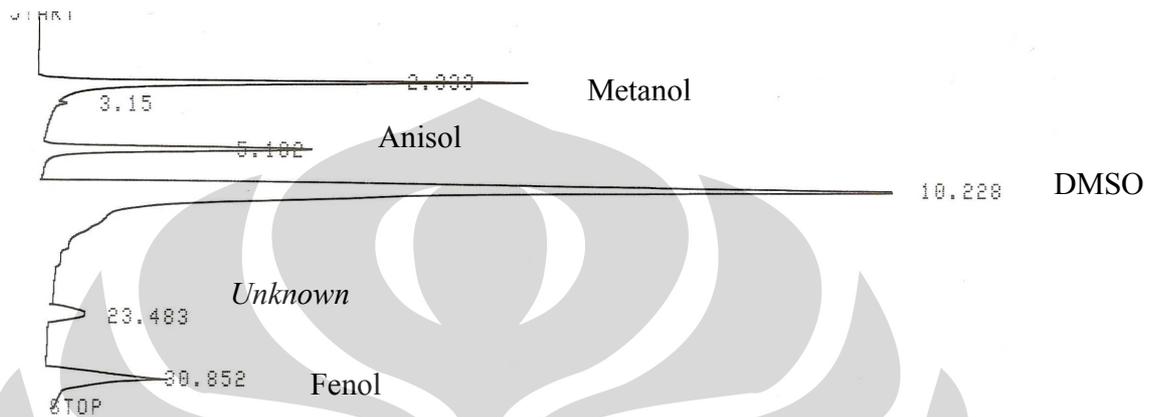
## Lampiran 18

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 18 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1,33)



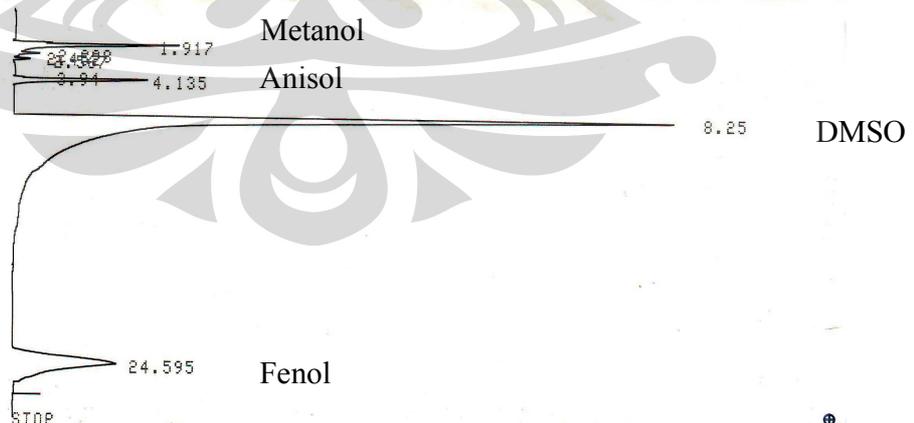
## Lampiran 19

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 24 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1,33)



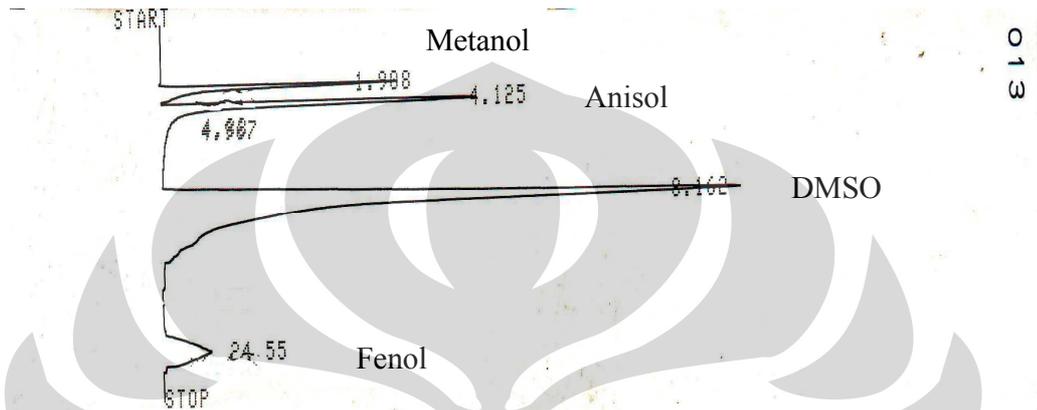
## Lampiran 20

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 6 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1)



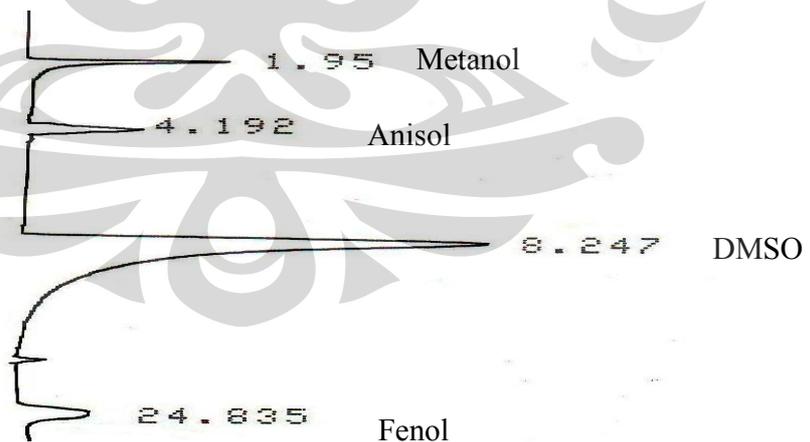
## Lampiran 21

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 10 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1)



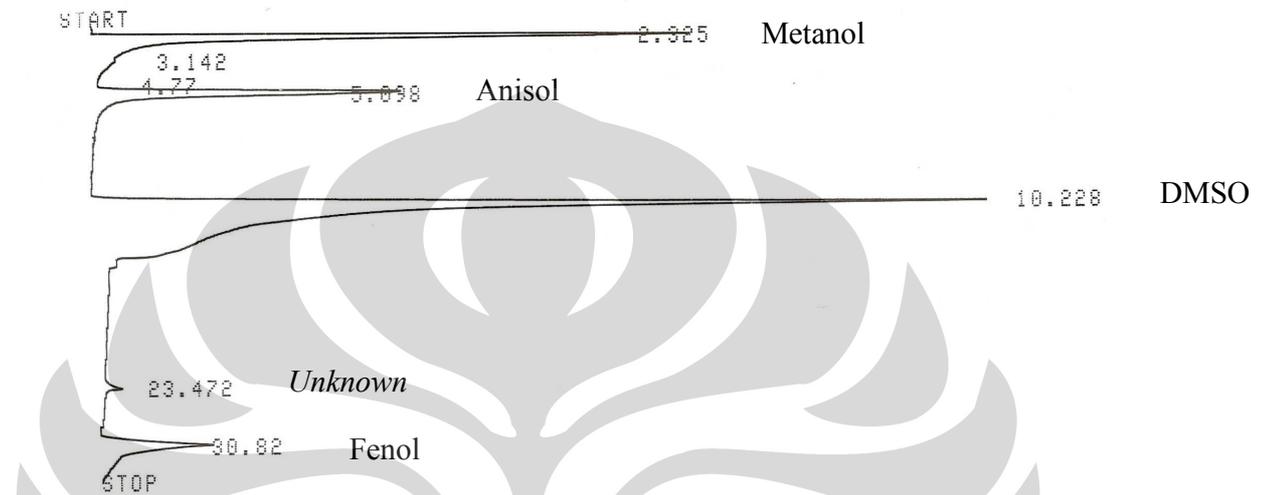
## Lampiran 22

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 14 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1)



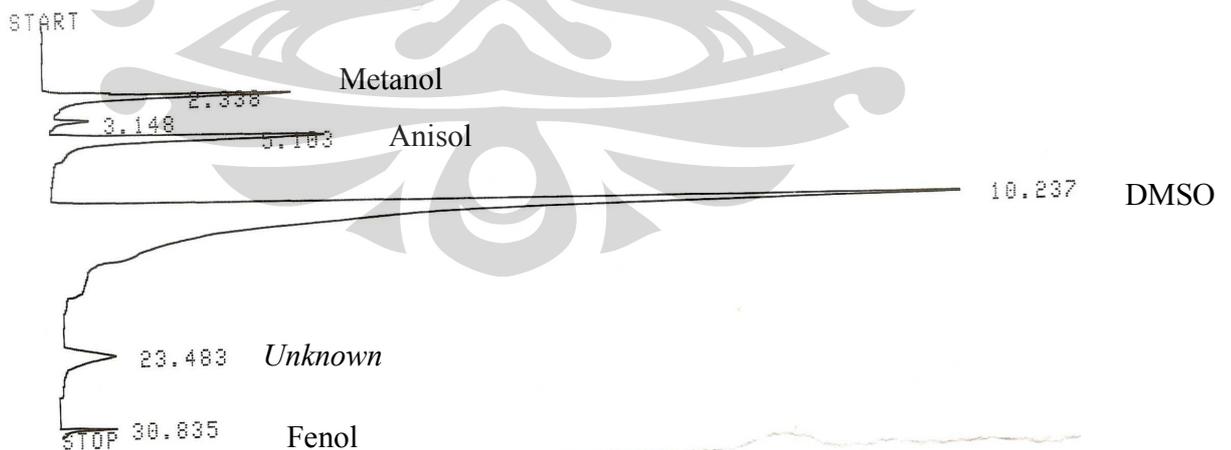
## Lampiran 23

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 18 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1)



## Lampiran 24

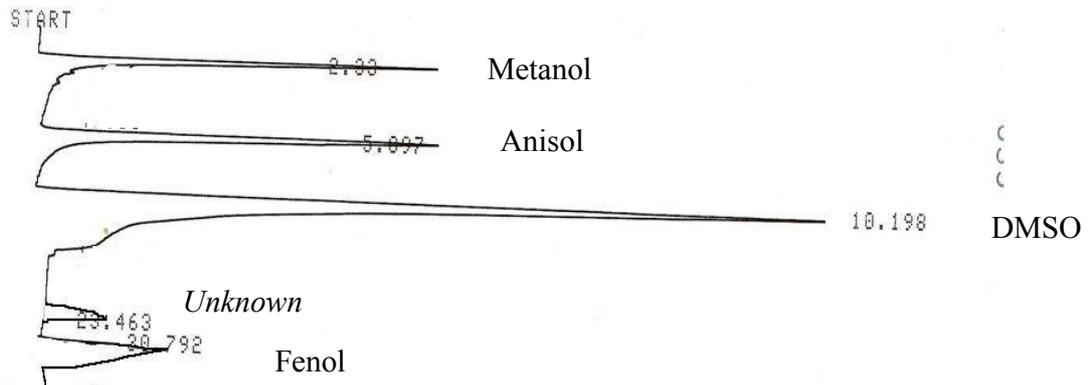
Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi 24 jam Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1)



## Lampiran 25

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X

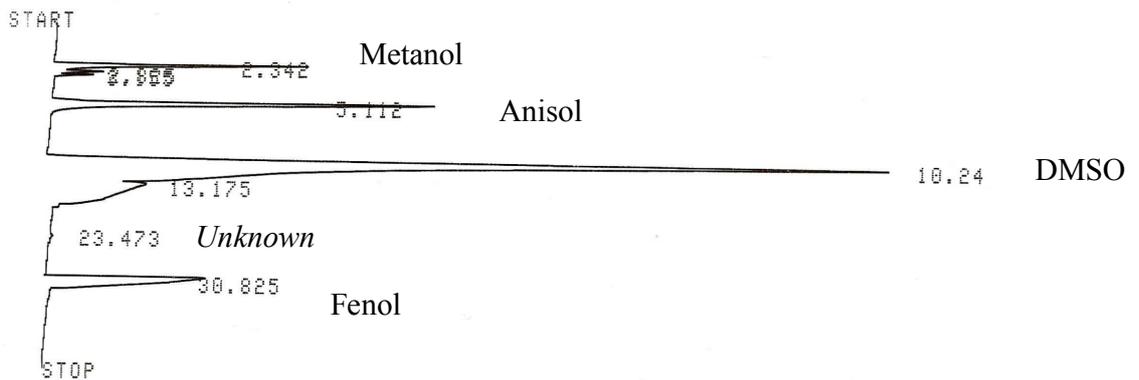
(Si/Al=1,33) Sebesar 5%



## Lampiran 26

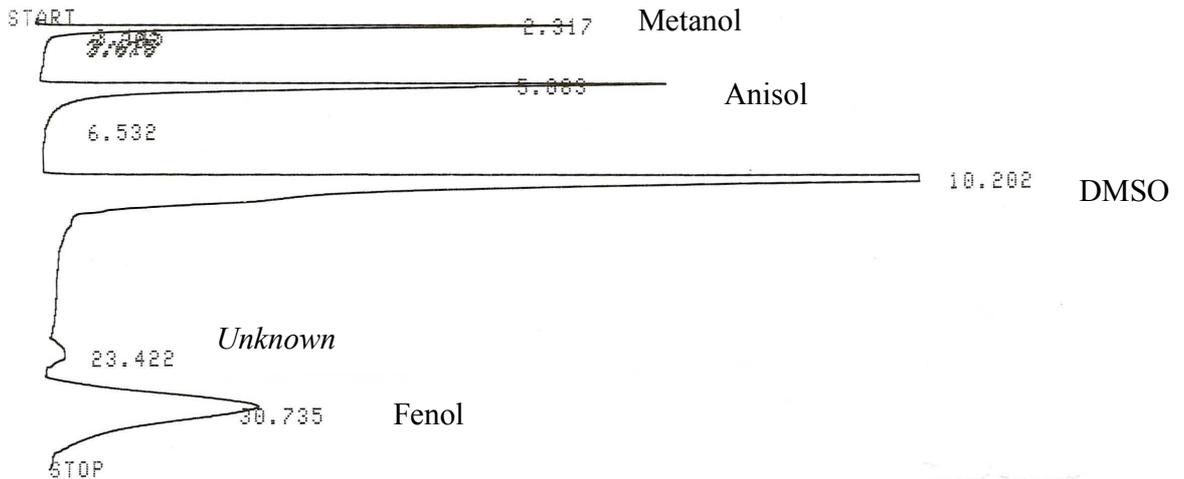
Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X

(Si/Al=1,33) Sebesar 15%



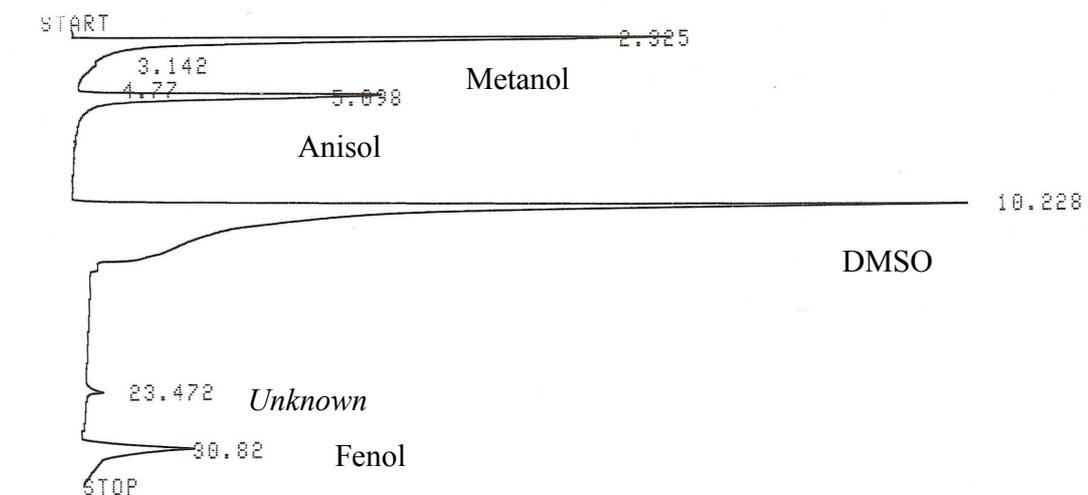
## Lampiran 27

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1,33) Sebesar 25%



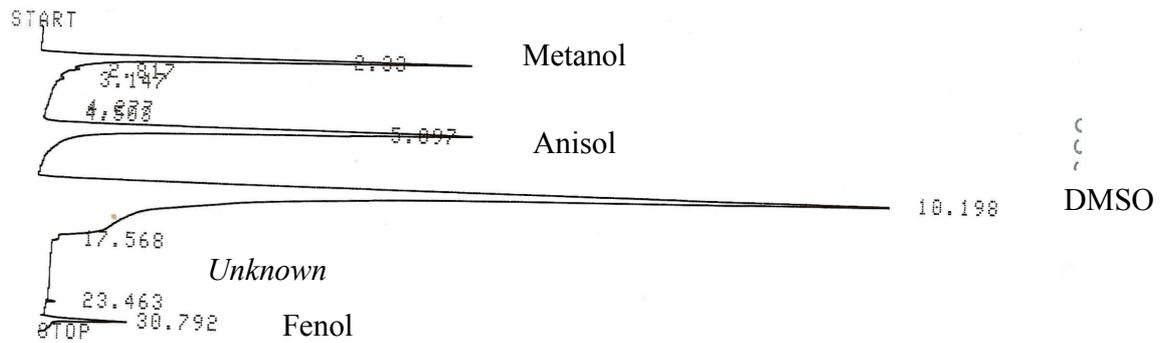
## Lampiran 28

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1) Sebesar 5%



## Lampiran 29

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1) Sebesar 15%



## Lampiran 30

Kromatogram GC Hasil Reaksi O-metilasi Menggunakan Zeolit X  
(Si/Al=1) Sebesar 25%

